THÈSE

PRÉSENTÉE

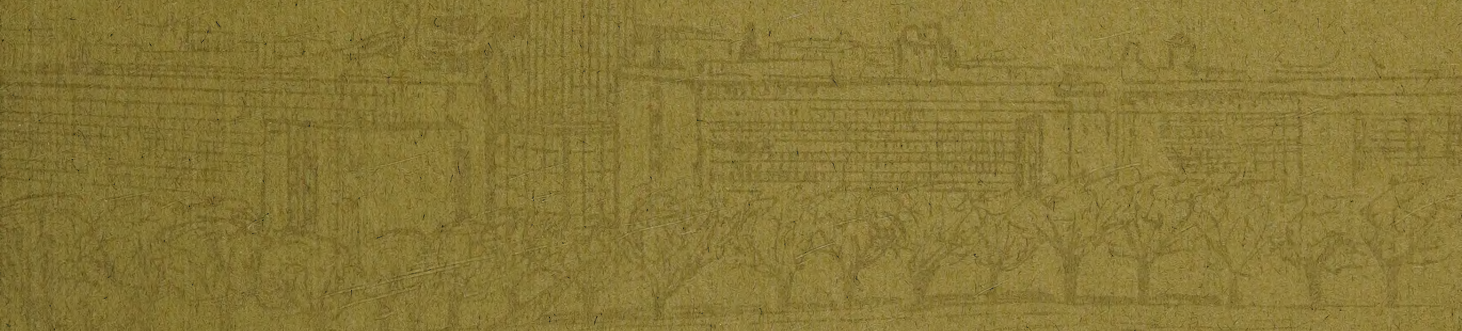
A L'UNIVERSITÉ DE PARIS VI

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

PAR

André BACHELLERIE



THÈSE

ETUDE DES TRANSITIONS DE PHASE DE Cr_2O_3 ET DE MnF_2 AVEC DES ULTRASONS DE HAUTE FREQUENCE (0,1 - 1,5 GHz)

soutenue le 7 juin 1973 devant la Commission d'Examen

J. TAVERNIER — *Président*

F. HARTMANN
J. JOFFRIN
J. VILLAIN — *Examinateurs*

T H E S E

présentée

A L'UNIVERSITE PARIS VI

pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

par

André BACHELLERIE

ETUDE DES TRANSITIONS DE PHASE DE Cr_2O_3 ET DE MnF_2 AVEC DES ULTRASONS DE HAUTE FREQUENCE (0,1 - 1,5 GHz)

soutenue le 7 juin 1973 devant la Commission d'Examen

Président : J. TAVERNIER

Examinateurs : F. HARTMANN

J. JOFFRIN

J. VILLAIN

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

REMERCIEMENTS

Cette thèse a été effectuée au Laboratoire d'Ultrasons de l'Université Paris VI.

Je remercie le Professeur Y. LE CORRE de m'avoir accueilli dans ce laboratoire.

Ce travail n'aurait pas été mené à bien sans les conseils et l'aide constante de MM. J. JOFFRIN et A. LEVELUT que je remercie chaleureusement. La partie expérimentale a été faite en collaboration avec M. Ch. FRENOIS ; elle doit beaucoup à sa compétence et je le remercie pour son aide. J'associe à ces remerciements tous les membres du laboratoire qui, par leur concours, ont permis la réalisation de ce travail et, en particulier MM. MACHORINE, VANDENBERGHE et VILLERMET pour l'orientation, la découpe et le polissage des cristaux, M. LEGROS pour la conception des ensembles mécaniques, M. RAFFORT pour leur réalisation. Merci aussi à M. J.C. BACRI du laboratoire d'Ultrasons et au laboratoire acoustoélectrique de THOMSON-CSF qui, grâce à la fourniture de couches de ZnO et CdS, ont rendu possibles des expériences pratiquement irréalisables par les méthodes classiques.

Je remercie également Mme LE TOULLEC qui a assuré une frappe attentive et rapide du manuscrit, Mme CREPIN et M. DESHAYES pour l'impression de l'ensemble.

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41548019_0025

P L A N

1 - INTRODUCTION 1
Bibliographie..... 9

2 - DISPOSITIF EXPERIMENTAL..... 11

I - Système générateur et détecteur d'ultrasons
II - Système de régulation..... 13
III- Interféromètre à ultrasons..... 15
IV - Champ magnétique..... 16
V - Caractéristiques et précision du système..... 16
Bibliographie..... 17

3 - ETUDE DE LA TRANSITION DE PHASE DE Cr_2O_3 A L'AIDE D'ULTRASONS DE HAUTE FREQUENCE.

Résumé Français..... 1
Résumé Anglais..... 2

1 - Introduction..... 3
2 - Théorie..... 5
3 - Dispositif expérimental et précision des mesures... 7
4 - Résultats expérimentaux..... 10
5 - Interprétation des résultats..... 13
6 - Conclusion..... 18
Bibliographie..... 20
Légendes des Figures..... 22

4 - ETUDE DE LA TRANSITION DE NEEL DE MnF_2 AVEC DES ONDES ACOUSTIQUES DE HAUTE FREQUENCE.

1 - Introduction..... 1
2 - Présentation théorique du phénomène d'atténuation ultrasonore critique..... 3

3 - Dispositif expérimental et précision des mesures..... 6
4 - Résultats expérimentaux..... 8
5 - Interprétation des résultats..... 13

Attenuation of high frequency acoustic waves in the low temperature side of the MnF_2 Neel point..... 17
Résumé..... 1
References..... 10

6 - Conclusion..... 18
Bibliographie..... 21
Légendes des figures..... 23

5 - CONCLUSION GENERALE..... 1
Bibliographie..... 6

1

INTRODUCTION

L'étude du comportement de divers systèmes physiques autour de leur point critique a beaucoup retenu l'intérêt des physiciens ces dernières années. Ceci a abouti à l'utilisation de multiples méthodes expérimentales et à d'intenses recherches théoriques[1]. Un récent calcul des coefficients critiques[2] des grandeurs statiques a relancé l'intérêt pour ce vaste sujet. Sans aborder ces développements, cet exposé d'introduction sera limité à une esquisse du phénomène de changement de phase.

Les transitions de phase présentent des comportements semblables dans des cas aussi différents à priori que les transitions magnétiques, ferroélectriques, de structure, liquide-gaz, liquides binaires, hélium suprafluide....[1]

Le premier essai véritablement cohérent pour comprendre les transitions à la fois sous leur aspect statique et dynamique est la théorie de Landau[2]. Il définit un paramètre d'ordre dont le caractère tensoriel est relié à la symétrie de chaque phase. Cette grandeur est nulle dans la phase la plus symétrique et non nulle dans celle de basse température. Landau développe un potentiel thermodynamique jusqu'au quatrième ordre en fonction du paramètre d'ordre.

Du point de vue de la dynamique des fluctuations, cette théorie repose essentiellement sur la thermodynamique des processus irréversibles et sur l'idée qu'à toutes les anomalies critiques doivent correspondre des forces thermodynamiques s'annulant à la température de transition[3]. Les coefficients de transport dans cette présentation doivent rester finis.[4]

Cette théorie n'explique pas tous les résultats expérimentaux obtenus, en particulier, elle conduit pour les ultrasons à une atténuation nulle pour $T > T_c$[5].

La portée des interactions constitue un paramètre important. On sait maintenant [6] que lorsque cette portée est grande, les fluctuations sont faibles et la transition est étroite en température ; la théorie de Landau est alors en général vérifiée très près du point de transition (supraconductivité). Au contraire, quand la portée des interactions est faible, limitée par exemple aux molécules les plus proches, les fluctuations deviennent importantes, la transition présente une grande largeur en température et la théorie de Landau n'est pas vérifiée car elle néglige les interactions entre fluctuations comme toutes les théories de champ moyen.

Un bon exemple de cette situation est la transition suprafluide de l'He^4 où la théorie de Landau n'est vérifiée dans aucun domaine de température [1].

Mais on peut aller plus avant dans la compréhension des phénomènes critiques en remarquant que des systèmes différents ont, près de leur point critique, des comportements très similaires.

On peut essayer de comprendre cette similitude en énonçant une hypothèse appelée parfois principe d'universalité : deux systèmes isomorphes du point de vue des symétries ont un comportement critique analogue ; l'écart $T - T_c$ détermine une longueur de corrélation $\xi(T)$ telle qu'à cette échelle, le paramètre d'ordre a une valeur à peu près constante. De plus, on reconnaît là, la possibilité d'une instabilité quand cette longueur tend vers une dimension macroscopique.

Ces remarques conduisent directement à la conclusion que la nature des fluctuations est déterminée par la symétrie du paramètre d'ordre et par la dimension du système. On est ainsi amené à énoncer les lois d'echelles. Dans le cas statique, elles prennent deux formes : [7]

- D'une part le potentiel de Gibbs $G(\varepsilon,M)$ (M est le paramètre d'ordre et ε représente l'écart par rapport à la température critique : $\varepsilon = \frac{T-T_c}{T_c}$).est une fonction homogène générale.

- D'autre part, la fonction de corrélation présente dans tout le plan $(k, K = \xi^{-1})$(où k est le vecteur d'une fluctuation) une dépendance caractéristique en fonction du seul paramètre $(k\xi)$. Il convient de distinguer le régime hydrodynamique $k\xi < 1$ du régime critique $k\xi > 1$ (Fig.1).

Les lois d'echelles dynamiques [8] expriment que la fréquence caractéristique des modes critiques est une fonction homogène de k, vecteur d'onde de mode et de ξ^{-1}, autrement dit : $\omega(k) = k^z \Omega(k\xi)$ où z est l'exposant critique du mode de fluctuation dominant à la transition.

Toutefois, les lois d'échelles si elles fournissent des indications précieuses,ne permettent pas à elles seules de calculer les coefficients de transport à la transition. FIXMAN[9] examinant le cas des mélanges binaires,souligna que les coefficients de viscosité et l'absorption ultrasonore devaient être reliés à des processus non linéaires. Depuis, cette remarque a été developpée par K. KAWASAKI[10] et KADANOFF et SWIFT[11] l'ont systématisée.

Du point de vue de la propagation des ultrasons, il faut distinguer deux types de couplage :

- Un couplage fort : dans l'hamiltonien d'interaction intervient un terme linéaire en fonction du paramètre d'ordre de la forme $H_{int} = G\varepsilon M$ où M représente le paramètre d'ordre et ε la déformation. C'est un processus de ce type qui intervient lorsqu'il existe un "mode mou" dont la fréquence tend vers zéro à T_c; il y a couplage résonnant .

- Un couplage faible : l'hamiltonien d'interaction est quadratique en fonction du paramètre d'ordre $H_{int} = G\varepsilon M^2$. Ce cas est toujours celui des transitions de phase magnétique ; les ultrasons n'interviennent pas dans la transition proprement dite et jouent seulement le rôle d'analyseur des fluctuations.

En ce qui concerne les méthodes expérimentales, on peut dire que presque toutes les méthodes de la physique sont utilisées pour l'étude des transitions de phase ; chacune d'elles possède un domaine d'application et permet de déterminer certains des exposants critiques et des comportements dynamiques.

Il est donc possible de distinguer :

- Les méthodes sensibles aux variations de susceptibilité statique de grande longueur d'onde qui mesurent : la chaleur spécifique, la chaleur latente, la densité, la dilatation, l'aimantation, la compressibilité, la propagation d'ondes ultrasonores de très basse fréquence ... tous paramètres thermodynamiques associés à une équation d'état.

- Les méthodes dynamiques qui permettent d'atteindre des coefficients de transport tels que la viscosité, la conductibilité électrique, la conductibilité thermique, les coefficients de diffusion, ou l'atténuation ultrasonore.

- Enfin les méthodes qui mesurent les diverses composantes de Fourier à $q \neq 0$ et $\omega \neq 0$ des fluctuations critiques telles que la diffusion optique (Rayleigh, Raman, Brillouin), la diffusion des rayons X, la diffusion des neutrons, l'étude de la propagation d'ondes ultrasonores à fréquence élevée.

Parmi les différents procédés cités ci-dessus, nous esquisserons une analyse des propriétés de quelques-uns d'entre eux de façon à leur comparer les résultats obtenus par les méthodes ultrasonores.

Nous considèrerons d'abord celles qui permettent d'accéder aux propriétés locales des systèmes critiques : la résonance paramagnétique électronique qui apprécie la déformation statique d'un site cristallin, la résonance magnétique nucléaire qui évalue l'aimantation locale, ou le gradient de champ électrique..., les mêmes remarques valent pour la diffusion Mössbauer ; on sait alors en général relier les mesures des fréquences de résonance aux valeurs moyennes du paramètre d'ordre et les largeurs de raie au spectre des fluctuations locales. Leur point commun est

qu'elles mettent en jeu des fonctions de corrélations de grandeurs thermodynamiques et qu'une approche hydrodynamique dans la limite des fréquences nulles suffit à rendre compte de leurs variations.[12]

Les méthodes optiques fournissent des indications pour les excitations de vecteur d'onde approximativement mesurées par celui de la lumière. L'analyse de Fourier de la lumière diffusée permet d'oberver la fonction de corrélation dynamique de l'indice de réfraction. Par diffusion Raman ou par absorption infrarouge, la fréquence propre et le temps de vie peuvent être obtenus. La diffusion Rayleigh par les liquides[12] ou par les cristaux réclame un pouvoir de résolution meilleur que 10^7 Hz ; elle permet d'observer les fluctuations de température ou de concentration. Enfin, la diffusion Brillouin[13] explore une gamme de fréquences qui s'étend en pratique de 10^9 à 10^{10} Hz ; elle est sensible aux fluctuations de densité du milieu.

L'avantage des expériences de diffraction neutronique sur les précédentes est de pouvoir explorer toute la zone de Brillouin. Elles permettent de procéder à l'analyse de Fourier des fonctions de corrélation à deux opérateurs du paramètre d'ordre jusqu'à des valeurs minima du vecteur d'onde de quelques 10^{-2} $\mathring{A}^{-1}$. Le pouvoir séparateur des spectromètres à neutrons permet d'obtenir une résolution en énergie de l'ordre de 0,13 meV pour la diffraction incohérente et 0,016 meV pour les pics de Bragg. On a pu, par exemple, se faire une idée assez précise des lois de dispersion des modes de vibration associés aux changements de structure cristalline. En particulier, la fréquence des modes de phonons dans toute la zone de Brillouin a été suivie en-dessus et en-dessous de la température de transition; dans quelques cas l'existence de modes "mous" a été établie. La technique des neutrons a été appliquée à beaucoup de composés magnétiques[15] et a permis de mesurer le comportement de la susceptibilité inhomogène, le comportement critique de la longueur de corrélation et celui du temps de relaxation de la composante longitudinale de fluctuation des spins.

Les techniques ultrasonores se différencient des précédentes pour plusieurs raisons :

1) La gamme des fréquences dans laquelle il est possible d'opérer s'étend sur plusieurs décades de 1 KHz à 10 GHz.

Il est parfois possible comme dans le cas de la diffusion de la lumière ou des neutrons de choisir de travailler en régime hydrodynamique ou critique ; puisqu'à toutes les transitions de phase on peut associer un temps $\tau(T)$ caractéristique des fluctuations qui croît généralement lorsque $T \to T_c$, il existe une température pour laquelle $\omega\tau = 1$; elle sépare le régime basse fréquence ($\omega\tau << 1$) du régime haute fréquence ($\omega\tau >> 1$). Il est possible (si les propriétés physiques de la transition le permettent) de choisir le régime dans lequel on veut travailler. C'est d'ailleurs ce qui a été fait dans ce travail.

2) Dans des expériences de diffusion de neutrons ou en optique, on effectue toujours une analyse de l'onde diffusée : le dispositif expérimental comporte en principe une source monochromatique et un détecteur dont la position par rapport au centre diffusant permet de sélectionner un angle de diffraction. Le détecteur est en outre capable d'analyser en fréquence le signal reçu. De cette mesure on déduit une section efficace différentielle.

Dans une expérience ultrasonore, au contraire, on mesure d'une part l'énergie perdue par le faisceau incident (absorption ultrasonore : $\sigma(\omega)$) et d'autre part la variation de phase du signal reçu lorsqu'il a traversé le centre diffusant (dispersion ultrasonore $\frac{\Delta v(\omega)}{v}$); ces expériences sont analogues aux mesures de turbidimétrie. Le détecteur ultrasonore apprécie l'énergie totale perdue par le faisceau incident, quels que soient les processus qui sont responsables des diffusions. C'est une manière de procéder plus globale que celle qui prévaut dans les expériences de diffraction ; la mesure est reliée à une section efficace totale et non plus différentielle.

3) Dans le cas des transitions de phase magnétiques du second ordre, la forme analytique du couplage entre le paramètre d'ordre et la déformation élastique conduit en général à une fonction de corrélation à quatre opérateurs de spin.

Au contraire, dans la diffusion des neutrons par les composés magnétiques, la fonction de corrélation qui intervient est à deux opérateurs de spin. La différence avec les ultrasons est donc importante et l'on conçoit comment la dernière peut quelquefois être complémentaire de la première, et à moindres frais !

Dans les expériences décrites ci-dessous, on sera amené à utiliser les résultats des neutrons. Il est intéressant pourtant de situer les possibilités présentes de la méthode ultrasonore par rapport à celle des neutrons.

Bien que cette situation ne soit pas sans espoir[15], la méthode ultrasonore est limitée actuellement aux petits vecteurs d'onde. La figure 1 résume les possibilités de la diffraction neutronique, elle montre aussi qu'il y a une région des petits vecteurs d'onde qui est inaccessible aux neutrons et que les ultrasons permettent d'explorer.

Le MnF_2 est un cristal magnétique de type antiferromagnétique à deux sous-réseaux ($T_N \sim 67{,}4°C$). Bien que sa structure cristalline et sa strucutre magnétique soient plus complexes, Cr_2O_3 est également un antiferromagnétique à deux sous-réseaux. ($T_N \sim 308°K$). Ces deux corps ont toutefois des propriétés différentes en ce qui concerne la portée des interactions d'échange. Dans le premier, elles sont limitées au premier et second voisins[17], c'est-à-dire qu'elles sont à courte portée ; dans le second, elles vont jusqu'au douzième voisin[18], c'est-à-dire que sans être très grande, la portée de ces interactions est tout de même plus grande dans Cr_2O_3 que dans MnF_2. Donc, si la magnétostriction en volume est plus importante que la magnétostriction sur un ion, ce que montrent les expériences décrites ci-dessous, cette portée des corrélations doit se traduire par un élargissement de zone de température où l'on peut observer des phénomènes critiques. C'est ce qui a été observé.

Pour $T > T_N$, il y a de plus un intérêt certain à étudier simultanément ces deux corps : en effet, dans les corps où la symétrie est suffisante et la portée des interactions faible, les ultrasons sont couplés essentiellement aux fluctuations de la densité d'énergie. Ceci se traduit par un exposant critique de l'atténuation $y (\Delta\alpha \sim \varepsilon^{-y})$ proche de 0. Dans le cas des cristaux magnétiques conducteurs où la portée des interactions est grande, le couplage avec la densité d'énergie devient négligeable et les ultrasons sont couplés aux fluctuations du paramètre d'ordre. Le coefficient y devient proche de 1,6 ou 1,8, comme cela a été observé dans le nickel ou le chrome.

Dans cette thèse sont données et discutées plusieurs observations de diffusion critique des phonons par les fluctuations magnétiques de Cr_2O_3 et MnF_2.

Expérimentalement, on a systématiquement cherché à etendre la gamme des fréquences ultrasonores utilisées jusqu'à présent et ceci afin d'atteindre plus facilement des régions non hydrodynamiques.

Des résultats de mesure, on a cherché à déduire les coefficients critiques de quelques coefficients de transport et à les comparer à ceux obtenus au terme des diverses théories connues actuellement.

BIBLIOGRAPHIE

(1) L.P. KADANOFF, W. GOTZE, D. HAMBLEN, R. HECHT, E.A.S. LEWIS, V.V. PALCIAUSKAS, M. RAYL, J. SWIFT, Revs.Mod.Phys. 39, 395, (1967).

(2) K.G. WILSON, Phys.Rev.Lett. 28, 548 (1972).

(3) L.D. LANDAU et E.L. LIFCHITZ . Cours de Physique Théorique : Physique Statistique. Editions MIR, Moscou (1967).

L.D. LANDAU et I.M.KHALATNIKOV, DOkl.Akad.Nauk.SSSR,90, 469 (1954).

L. VAN HOVE , Phys.Rev. 95, 1374 (1954).

P.G. de GENNES , J. VILLAIN, J. Phys.Chem.Solids, 13, 10 (1960).

(4) P.W. DEYBE, Phys.Rev.Lett. 14, 783 (1965).

(5) C.W. GARLAND, Physical Acoustics, Vol. VII. (Academic Press, New York, 1970) p.52.

(6) V.L. GINZBURG, Sov.Phys.Sol.State, 2, 1824 (1960).

A.P. LEVANYUK, Sov.Phys.JETP, 9, 571 (1959).

(7) B. WIDOM, J. Chem.Phys.43, 3892 (1965).

B. WIDOM, J. Chem.Phys. 43, 3898 (1965).

L.P. KADANOFF, Physics, 2, 263 (1966).

(8) B.I. HALPERIN, P.C. HOHENBERG, Phys.Rev. 127, 952 (1962).

(9) M. FIXMAN , J. Chem.Phys.26, 31[illegible] (1962).

(10) K. KAWASAKI, Phys.Rev. 150, 291 (1966).

K. KAWASAKI, Annals of Physics, 61, 1 (1970).

(11) L.P. KADANOFF and J. SWIFT, Phys.Rev. 166, 89 (1968).

(12) L.P. KADANOFF and P.C. MARTIN, Annals of Physics, 24, 41[illegible] (1963).

(13) B. CHU, F.J. SCHONES, Phys.Rev.Lett. 21, 6 (1968).

H.L. SWINNEY, U.Z. CUMMINS, Phys.Rev. 171, 152 (1968).

P.N. PUSEY, W.I. GOLDBURG, Phys.Rev. Lett. 23, 67 (1969).

M. DUBOIS, P. BERGE, Phys.Rev.Lett. 26, 121 (1971).

(14) N.C. FORD, K.H. LANGLEY, V.G. PUGLIELLI, Phys.Rev.Lett. 21, 9 (1968.
R.W. GAMMON, H.L. SWINNEY, H.Z. CUMMINS, Phys.Rev.Lett. 19, 1467 (1967).
S.H. CHEN , N. POLONSKY, Phys.Rev.Lett. 20, 909 (1968)

(15) A.W. McREYNOLDS, T. RISTE, Bull.Am.Phys.Soc. 1 , 133, (1956).
Phys Rev. 95, 1161 (1954).
M.J. COOPER, R. NATHANS J.Appl.Phys. 37 , 1041 (1966)
R. NATHANS, F. MENZIGER, S.J. PICKART, J. Appl. Phys. 39, 1237 (1968)
M.P. SCHULHOF, R. NATHANS, P. HELLER, A. LINZ, Phys.Rev.B4, 2254 (1971).

(16) E.H. JACOBSEN , Supplément au Journal de Physique , 33, Colloque C6, p.25 (1972).

(17) G.G.LOW, A. OKASAKI, R.W.H. STEVENSON,K.C. TURBERFIELD, J. Appl.Phys. 35, 998 (1964).
A. OKASAKI, K.C.TURBERFIELD R.W. STEVENSON, Phys.Lett. 8, 9, (1964).

(18) E.J. SAMUELSEN ,M.T. HUTCHINGS, G. SHIRANE , Physica 48, 13 (1970).

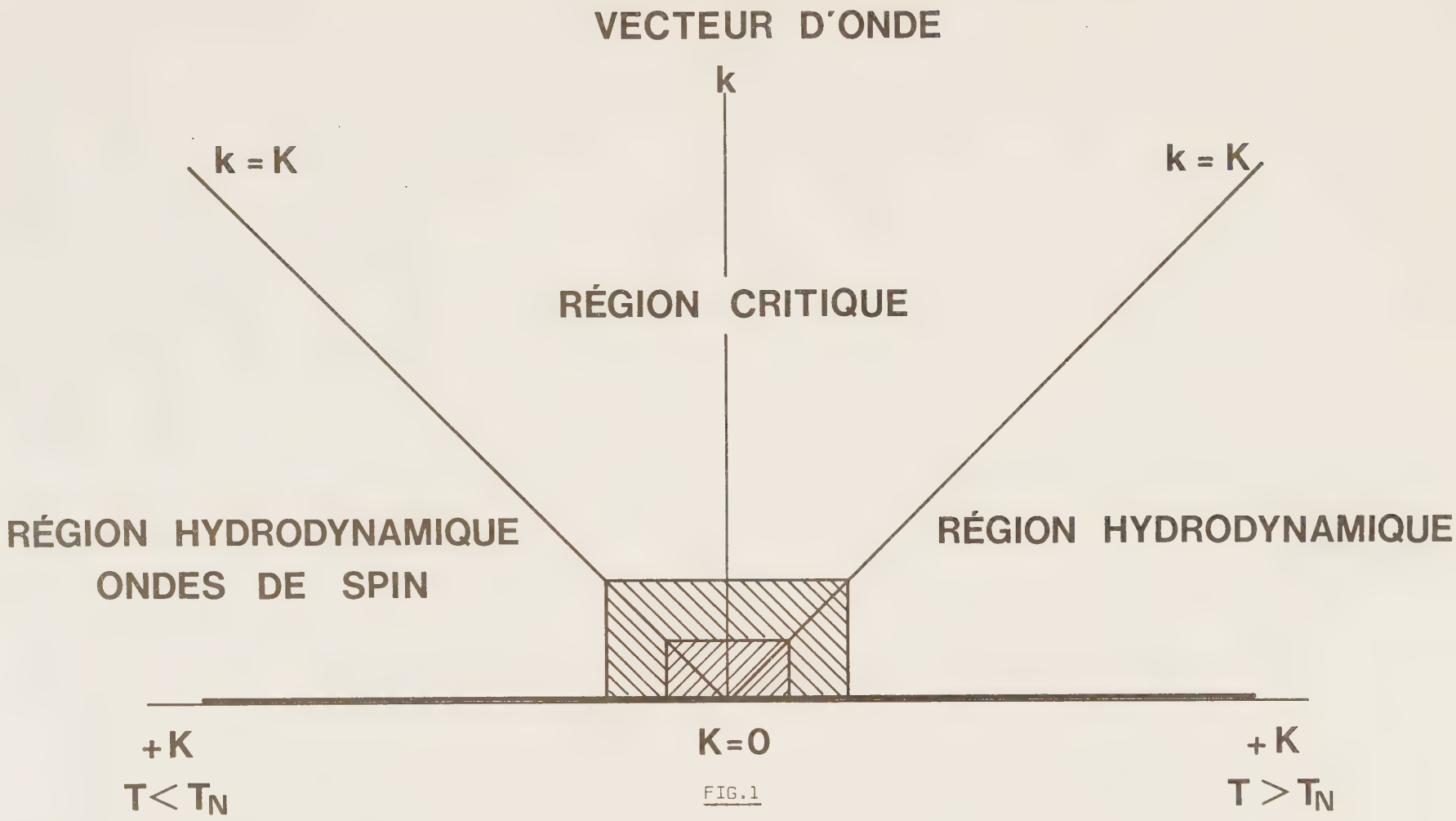


FIG.1

Région du plan (k,K) non accessible aux neutrons.

Région du plan (k,K) où interviennent de grandes corrections de rés ution

Région du plan (k,K) non affectée par la résolution.

Région du plan (k,K) accessible aux ultrasons.

2

DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Il est conçu pour mesurer en fonction de la température et du champ magnétique les variations de vitesse de phase et d'amplitude d'un signal ultrasonore après propagation dans un cristal.

Il comprend quatre parties :

I - Un système générateur d'ultrasons.

II - Une régulation de température.

III - Un interféromètre à ultrasons qui mesure les variations de vitesse de phase et d'atténuation.

IV - Le champ magnétique est établi grâce à un système de bobines supraconductrices.

I - SYSTEME GENERATEUR ET DETECTEUR D'ULTRASONS.

Il comprend essentiellement une couche piézoélectrique et le système hyperfréquence excitateur et détecteur des ultrasons dans la couche.

Dans la disposition par réflexion (Fig.1) les ultrasons sont créés dans le transducteur, se propagent dans le cristal, sont réfléchis à l'extrémité du cristal et détectés dans la couche piézoélectrique.

La disposition par transmission nécessite un second transducteur à l'extrémité du cristal pour détecter les ultrasons.

A - La couche piézoélectrique.

Elle est constituée d'un matériau fortement piézo-électrique qui joue le rôle du transducteur de quartz classique, l'épaisseur de la couche piézoélectrique dépend de la fréquence à laquelle on souhaite opérer ; elle est de l'ordre du micron aux fréquences considérées ici.

Le corps piézoélectrique est déposé sur une couche métallique qui sert de masse au système hyperfréquence générateur des ultrasons dans la couche piézoélectrique.

La largeur de bande et le rendement d'un transducteur dépendent d'une part de trois paramètres invariables qui sont les impédances acoustiques du support, de la couche métallique et de la couche piézoélectrique. Ils dépendent d'autre part des épaisseurs respectives de la couche métallique et de la couche piézoélectrique. Ces épaisseurs peuvent être calculées de façon à optimiser la largeur de bande et le rendement de l'ensemble.(1)

B - Système hyperfréquence excitateur.

Il est représenté sur la fig.1. Il comprend essentiellement un corps en cuivre (pièce N° 2) et une fiche hyperfréquence au bout de laquelle est centrée une pièce métallique (pièce N°2) dont la position par rapport à la précédente peut varier grâce à un ressort en bronze au beryllium. Les extrémités en contact avec le transducteur des pièces N°1 et N°2 ont été rendues planes par doucissage et polies optiquement. Cette opération augmente considérablement le facteur de conversion, réduit les risques de claquage de la couche et permet l'établissement d'un bon contact thermique entre la pièce N°1 et la couche métallique. On peut ainsi évacuer l'énergie dissipée dans celle-ci.

Les avantages de ce mode de génération sont considérables :

- ses pertes par conversion peuvent être de quelques dB
- si les épaisseurs des couches ont été correctement calculées et réalisées (c'est-à-dire les impédances convenablement adaptées), le dispositif est à large bande. C'est ainsi que nous avons pu

disposer d'une couche fabriquée au laboratoire utilisable de 0.1 GHz à 1 GHz.

Enfin, la couche métallique qui se trouve située sous la couche piézoélectrique et qui est destinée d'abord à l'excitation du transducteur peut servir à refermer un circuit thermique et contribue à établir l'homogénéité en température.

Le rendement élevé des couches de ZnO rend le système beaucoup plus intéressant que le système classique avec quartz et cavités : sa dynamique est plus grande ; les grandes atténuations observées lors des transitions de MnF_2 et Cr_2O_3 l'ont rendu absolument indispensable.

II - SYSTEME DE REGULATION.

A - Principe

Il consiste à enlever à l'ensemble à réguler une certaine quantité de chaleur tandis qu'un dispositif à asservissement électronique compense cette perte.

Le refroidissement est obtenu en faisant varier la pression du gaz He dans les parois du cryostat de régulation. La sonde de température représentée sur la fig.3 commande alors le système électronique décrit ci-dessous. L'avantage essentiel d'un tel système réside dans l'utilisation de l'asservissement électronique, lequel a des temps de réponse très faibles.

B - Contrôle de la pression.

Le système est représenté sur la partie gauche de la figure 2.

Il suffit de vider l'enceinte isolante du cryostat à l'aide de la pompe primaire puis de fermer la vanne.

On introduit l'He gazeux dans l'enceinte à l'aide de la vanne micrométrique.

C - le cryostat de régulation.

Il se trouve représenté à l'intérieur du cryostat contenant les bobines supraconductrices sur la fig.2. Il est constitué de deux enveloppes cylindriques coaxiales. Le détail de sa partie inférieure est représenté sur la fig.3.

D - Le système électronique de chauffage.

La fig.3 montre la conception de la pièce régulée à l'intérieur de laquelle se trouve le cristal à étudier. Sous le ruban de chauffage se trouve logée une sonde de température. Cette sonde prélève l'information de température et commande le système électronique de chauffage. Comme il importe que l'information passe du ruban au système dans les délais les plus brefs, ceci implique :

- que le temps de réponse de la sonde soit le plus court possible.
- que le contact thermique sonde-ruban soit bon. Ceci est réalisé en établissant un contact mécanique entre la sonde et le ruban et en utilisant du plexol pour faire le contact thermique.

Le bloc diagramme de l'asservissement électronique qui contrôle le courant de chauffage est représenté sur la fig.2. Il comprend :

1 - Un pont de mesure alimenté par le signal de référence du détecteur synchrone. Dans l'un de ses bras est insérée la résistance de régulation.

2 - Un préamplificateur associé au pont de mesure.

3 - Un détecteur synchrone avec sa référence interne.

4 - Un amplificateur correcteur proportionnel, intégral, différentiel suivi d'un amplificateur parabolique et d'un amplificateur de puissance.

5 - Le ruban de chauffage : il est constitué d'un matériau métallique amagnétique, il est de plus bobiné suivant une double hélice pour annuler les effets magnétiques dûs au courant de régulation.

L. Bloc de régulation, homogénéité en température.

a) Bloc de régulation.

Il est représenté sur la fig.3. L'ensemble générateur d'ultrasons et logement du cristal est introduit à l'intérieur d'un manchon en cuivre électrolytique sur lequel se trouve bobiné le ruban chauffant.

b) Homogénéité en température

Ce facteur est important. En effet, si l'écart en température entre deux points du cristal est supérieur à l'écart entre deux mesures, les résultats ne sont plus significatifs et peuvent même être complètement faux.

L'homogénéité de la température du cristal dépend de nombreux facteurs.

1 - de la géométrie et de la nature du cristal.

2 - de la géométrie et du métal constituant le manchon chauffant, de la forme de l'élément de chauffage.

3 - de la géométrie et du métal du logement du cristal.

4 - des apports thermiques extérieurs au bloc régulé :

- rayonnement de la paroi interne
- apport de chaleur dû au cable coaxial.

Avec les dimensions maximales (ϕ = 1,5 mm, l = 7 mm) du faisceau ultrasonore, l'homogénéité calculée atteint 10^{-4}°K

III - INTERFEROMETRE A ULTRASONS

Il est dérivé de celui mis au point au laboratoire [2]. Il est représenté sur la partie droite de la fig.4. Quelques modifications à sa conception initiale ont été introduites.

Les cavités ont été remplacées par les systèmes générateurs décrits ci-dessus. Il a fallu prévoir des dispositifs adaptateurs d'impédance.

Lorsque les interrupteurs II et III sont sur la position 1, le système travaille par réflexion, et par transmission quand ils sont sur la position 2.

IV - LE CHAMP MAGNETIQUE.

Il a été obtenu à partir de bobines supraconductrices qui peuvent produire, soit un champ perpendiculaire au vecteur d'onde ultrasonore, soit parallèle. Il est mesuré par un fluxmètre avec une précision de 1 % environ. Dans la position $\vec{q} // \vec{H}$ sa valeur maximum est de l'ordre de 22 KGauss et de 40 KGauss dans le cas $\vec{q} \perp \vec{H}$. Seule cette dernière possibilité a été utilisée avec un champ de 30 KGauss environ.

L'homogénéité du champ magnétique dans la disposition utilisée, et compte tenu des précautions prises pour le ruban de chauffage, est de l'ordre de 10^{-4} pour la partie du cristal intéressée par la propagation ultrasonore.

V - CARACTERISTIQUES ET PRECISION DU SYSTEME.

Avec un résistance nominale de 500Ω à 0°C, la température peut être régulée pour T > 60°K tous les 0,005°K en utilisant la décade de précision du pont. Il est possible de réguler tous les 0,001°K en utilisant le réglage fin de la puissance. Des mesures ont montré que la précision de la régulation en température est nettement meilleure que 0,001°K.

Le système peut maintenir la régulation à une température déterminée durant plusieurs heures, plusieurs jours si necessaire. Dans ce dernier cas, il suffit d'alimenter de temps à autre en fluide cryogénique le cryostat extérieur au cryostat de régulation. Evidemment, la précision de la régulation est un peu moins bonne dans ce cas.

Les mesures de température ont été effectuées avec un appareil construit sur le même principe que la régulation, mais sans utiliser le dispositif de chauffage. Les précisions des mesures de température en valeur absolues n'excèdent pas 10^{-4}, valeur déterminée par la précision de la boîte des résistances de mesure du pont ; toutefois, comme leur stabilité en température est de l'ordre de quelques 10^{-6} et que la sonde de contrôle a une reproductibilité de 10^{-4}°K, ceci a permis par étalonnage

de mesurer la température critique de Cr_2O_3 : 307,60°K avec la précision de ± 0,01°K en valeur absolue et celle de MnF_2 : 67,37°K, avec la même précision.

La puissance crête des impulsions hyperfréquences n'a jamais dépassé 1 watt, ceci donne une puissance ultrasonore crête de 100 mW dans le cas des très bonnes couches de ZnO , soit, avec un facteur de forme 10^{-3}, une puissance moyenne maximum de 0,1 mW. Toutefois, les résultats ont été vérifiés avec des puissances inférieures de 2 ou 3 ordres de grandeur.

La précision sur les mesures d'atténuation et de vitesse de phase est proportionnelle à la longueur du cristal. Pour l'atténuation, elle dépend de la grandeur de l'atténuation. Tant que celle-ci ne dépasse pas 15 dB/cm, elle est de 0,1 dB/cm, quand elle dépasse cette valeur, elle diminue et n'est plus que de 0,3 dB/cm. La précision sur la mesure de $\frac{\Delta V}{V_o}$ est proportionnelle à la fréquence , elle atteint 10^{-5} à 1 GHz pour un parcours de 1 cm dans le cristal étudié.

BIBLIOGRAPHIE

(1) J.C. BACRI, Thèse de Troisième Cycle, Paris (1969).

(2) R. GUERMEUR, J. JOFFRIN, A. LEVELUT, J. PENNE, Phys.Lett. 13A, 107 (1961).

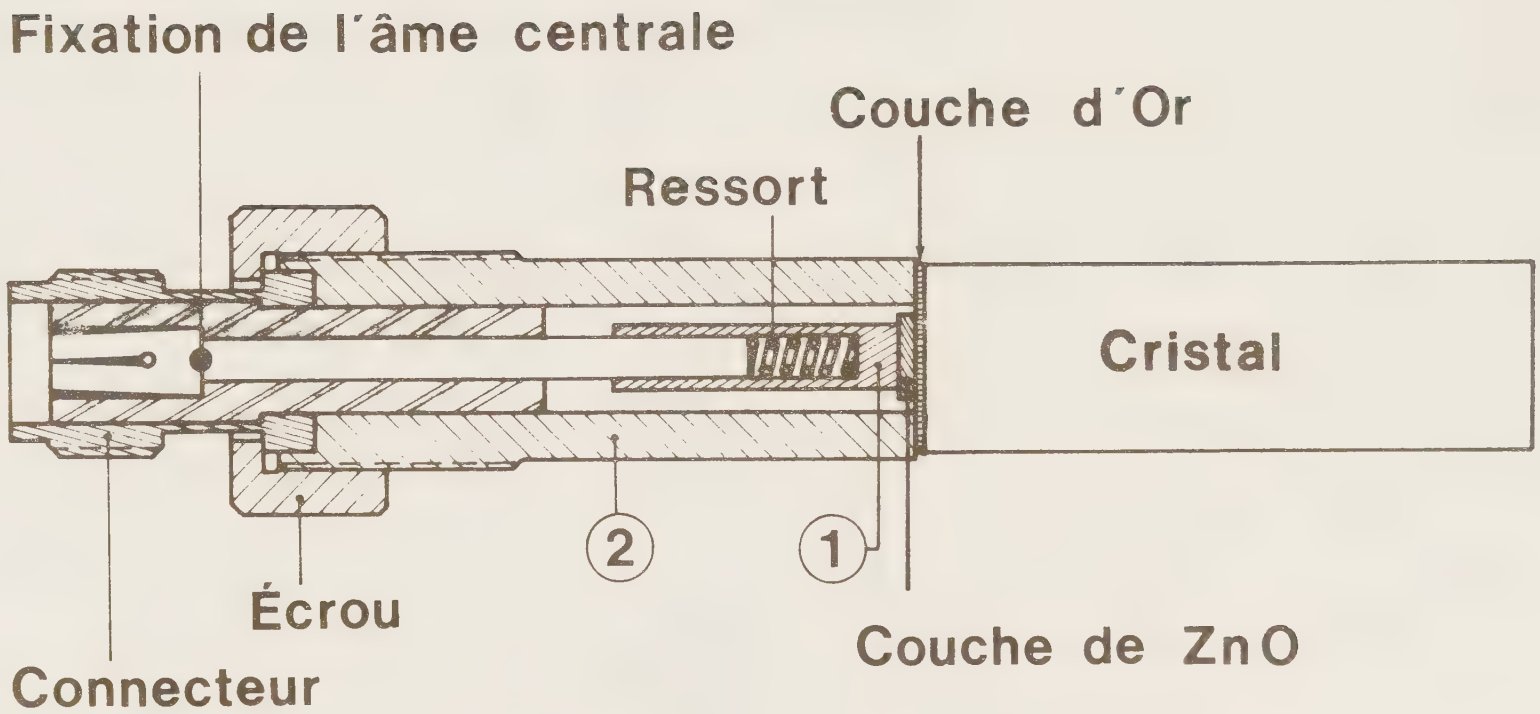
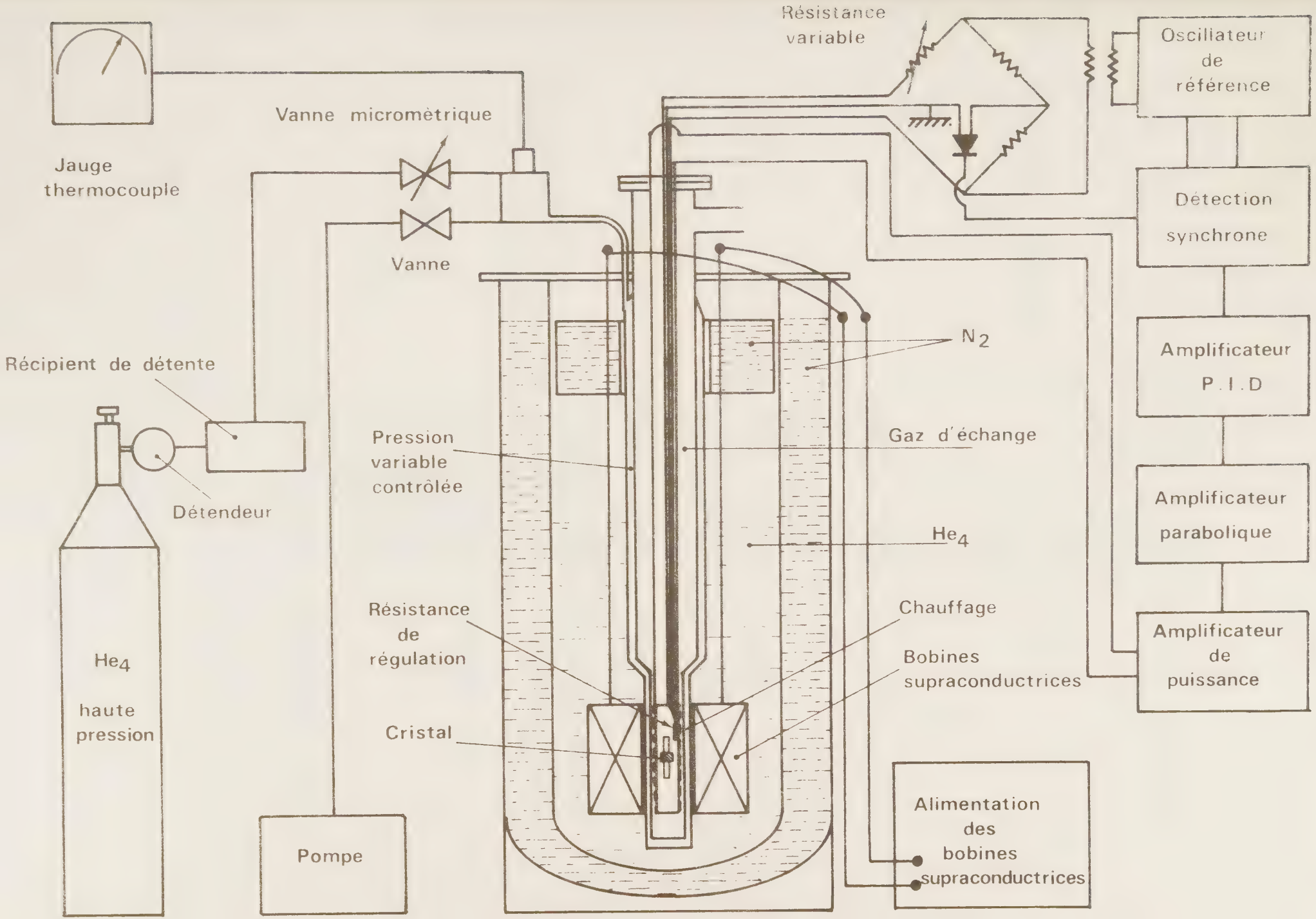

Fixation de l'âme centrale
Couche d'Or
Ressort
Cristal
2
1
Écrou
Couche de ZnO
Connecteur

FIG.1


Résistance variable
Oscillateur de référence
Jauge thermocouple
Vanne micrométrique
Vanne
Détection synchrone
Amplificateur P.I.D
Récipient de détente
Détendeur
N_2
Pression variable contrôlée
Gaz d'échange
Amplificateur parabolique
He_4
Résistance de régulation
Chauffage
Amplificateur de puissance
Bobines supraconductrices
Cristal
He_4 haute pression
Alimentation des bobines supraconductrices
Pompe

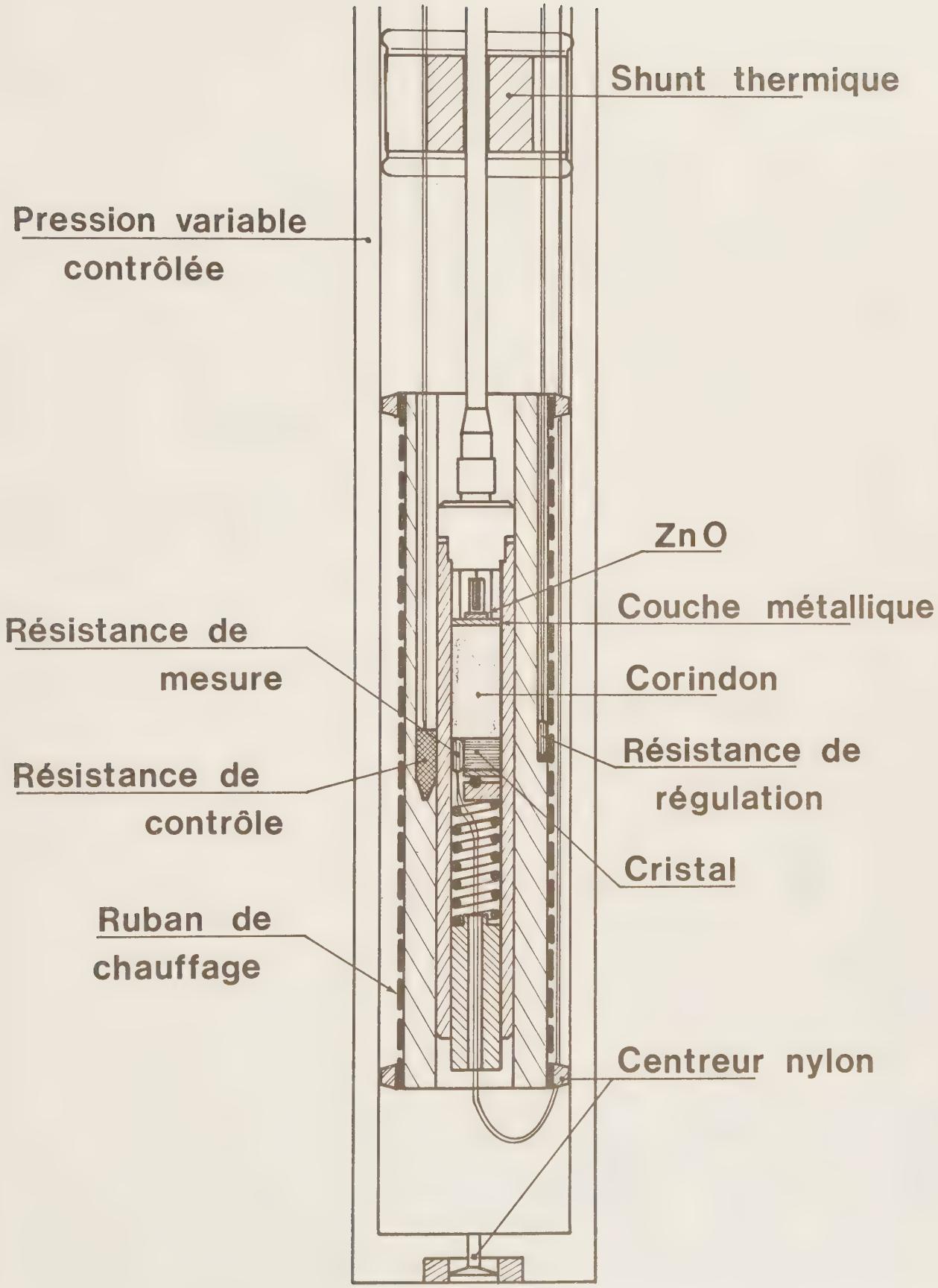
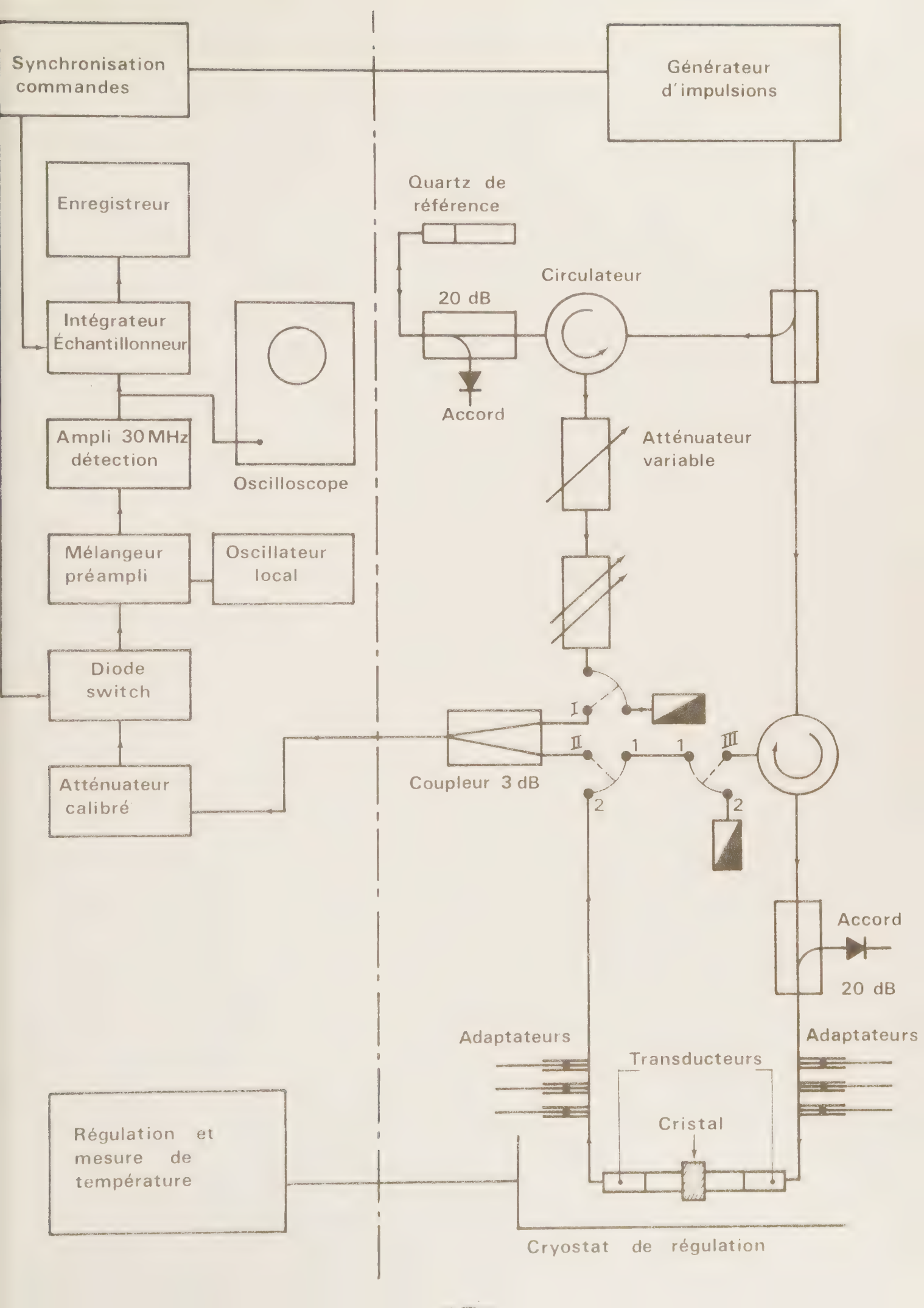

Shunt thermique
Pression variable contrôlée
ZnO
Couche métallique
Résistance de mesure
Corindon
Résistance de régulation
Résistance de contrôle
Cristal
Ruban de chauffage
Centreur nylon

FIG.3


Synchronisation commandes
Générateur d'impulsions
Enregistreur
Quartz de référence
Circulateur
20 dB
Intégrateur Échantillonneur
Accord
Ampli 30 MHz détection
Oscilloscope
Atténuateur variable
Mélangeur préampli
Oscillateur local
Diode switch
I
II
III
1
1
2
2
Coupleur 3 dB
Atténuateur calibré
Accord
20 dB
Adaptateurs
Transducteurs
Adaptateurs
Cristal
Régulation et mesure de température
Cryostat de régulation

PUBLICATION SOUMISE AU "JOURNAL DE PHYSIQUE"

N° 73-01

3

ETUDE DE LA TRANSITION DE PHASE DE Cr_2O_3 A L'AIDE D'ULTRASONS DE HAUTE FREQUENCE

A. BACHELLERIE et Ch. FRENOIS

Laboratoire d'Ultrasons *, Université Paris VI, 75230 Paris Cedex 5, France.

* Laboratoire associé au Centre National de la Recherche Scientifique.

Résumé - Cet article reporte l'étude à l'aide d'ultrasons de la transition de l'état paramagnétique à l'état antiferromagnétique de Cr_2O_3 $|T_N = 307,6\ K|$. Les expériences ont été faites pour des ondes ultrasonores de polarisation longitudinale se propageant suivant les axes binaire et ternaire du cristal et pour des fréquences variant de 0,1 à 1,5 GHz. Pour $T > T_N$ les exposants de la dépendance en fréquence (n) et en température (y) réduite de l'atténuation ont été déterminés , et l'amplitude de la variation a été mesurée. Suivant l'axe binaire n dépend de la fréquence $n \sim 2$ dans le cas basse fréquence ($\omega\tau_F \ll 1$) et y est voisin de 1,3 pour l'axe ternaire $n \sim 2$ et y est compris entre 1,2 et 1,4 . Ces résultats sont en bon accord avec les théories des modes couplés dans le régime de basse fréquence ($\omega\tau_F << 1$). Dans le même domaine de température et de fréquence et pour la même polarisation, la variation de vitesse de phase présente un accord excellent avec les théories basse fréquence. Son coefficient critique α, qui est celui de la capacité calorifique de spin a été mesuré , α = 0,12 pour l'axe binaire et α = 0,14 pour l'axe ternaire. Le temps caractéristique des fluctuations τ_F a été évalué suivant l'axe ternaire, il est égal à $0,7.10^{-10}$ sec pour $\varepsilon = 3.10^{-4}$. Enfin des mesures d'atténuation et de vitesse de phase ont été faites pour des ondes de polarisation transversale de fréquence 0,65 GHz se propageant suivant les mêmes axes. Aucune variation d'atténuation ni de vitesse de phase n'a été observée à T_N, ce qui implique que la magnétostriction en volume est prépondérante par rapport à la magnétostriction sur un ion.

Abstract - The antiferromagnetic-paramagnetic transition (T_N = 307,6K) of Cr_2O_3 has been examined using high frequency ultrasonic techniques (0,1 to 1,5 GHz with propagation along the binary and ternary axis) For $T > T_N$ the frequency n and reduced temperature exponents have been determined. For a propagation along the binary axis $n \sim 2$ at low frequencies ($\omega\tau_F \ll 1$) and $y \sim 1.3$ for the ternary axis $n \sim 2$ and $1.2 < y < 1.4$. These results are in good agreement with the predictions of the mode-mode coupling theory. In the same temperature and frequency range the critical exponent α of the phase velocity which is that of the magnetic specific heat has been measured α = 0,12 for the binary axis and α = 0,14 for the ternary axis. Using the attenuation and phase velocity results, the characteristic fluctuation time has been evaluated along the ternary axis $\tau_F = 0{,}7.10^{-11}$ sec for $\varepsilon = 3.10^{-4}$. The attenuation and phase velocity of transversal polarized waves of 0,65 GHz propagating along the binary and ternary axis have been measured. No variations of attenuation or phase velocity were found near T_N. This implies that the volume magnetostriction is much greater than the one-ion magnetostriction.

1 - Introduction

Tant du point de vue théorique que du point de vue expérimental, les transitions de phase ont été étudiées de façon intensive ces dernières années. Quelle que soit la méthode expérimentale choisie, l'interprétation aboutit toujours au calcul d'une fonction de corrélation qui peut être à deux ou quatre opérateurs du paramètre d'ordre [1]. Par exemple, dans les mesures de diffusion de la lumière ou des neutrons, les fonctions de corrélation sont à deux opérateurs. En ce qui concerne la méthode ultrasonore dans l'étude des transitions de phase magnétiques de second ordre ($s > 1/2$) le couplage spin-ultrasons est quadratique en opérateurs de spin, ce qui conduit à une fonction de corrélation à quatre opérateurs.

Mais, la portée des interactions joue un rôle ; c'est ainsi qu'on distingue les cristaux magnétiques conducteurs et les isolants.

Les conducteurs magnétiques présentent une grande variation de l'atténuation près de la transition. L'exposant y de la dépendance de l'absorption ultrasonore en fonction de la température réduite ($\varepsilon = (T-T_c)/T_c$) varie entre 1 et 1,6. Dans ces matériaux les forces d'échange sont à longue portée et les ondes ultrasonores se couplent de façon préférentielle aux fluctuations du paramètre d'ordre. La théorie des modes couplés explique de façon satisfaisante les résultats expérimentaux ; elle prévoit d'une part la valeur de l'exposant, d'autre part l'ordre de grandeur de la variation d'atténuation à la transition [2].

Pour les isolants magnétiques tels que EuO, $RbMnF_3$, MnF_2, y est petit en général puisqu'il varie de 0.(EuO) à 0,25 ($RbMnF_3$). Dans ces corps les interactions magnétiques sont limitées aux premiers voisins et les ondes ultrasonores sont couplées avec les fluctuations de la densité d'énergie de spin [3]. Le retour à l'équilibre s'effectue soit par diffusion d'énergie, soit par relaxation spin-phonon [4].

La plupart des expériences ultrasonores déjà publiées le sont dans le régime basse fréquence ; certains résultats atteignent le domaine intermédiaire ($\omega\tau \sim 1$), mais il y en a peu dans le domaine haute fréquence ($\omega\tau >> 1$) au moins en ce qui concerne les transitions magnétiques.

Dans les expériences qui sont décrites et interprétées ici, nous avons voulu étudier la transition magnétique de Cr_2O_3 en propageant dans ce cristal des ondes ultrasonores de fréquences comprises entre 0,1 et 1,5 GHz.

On sait que si l'on introduit des ions Cr^{3+} en concentration suffisante[5] dans un cristal de corindon, il existe des forces d'échange dont la portée ne se limite pas à l'interaction entre premiers voisins. Il en est de même de Cr_2O_3 où la diffusion des neutrons montre que l'intégrale d'échange entre dixièmes voisins n'est pas négligeable[6].

L'intérêt du choix de ce cristal réside dans le fait que c'est un isolant avec des interactions d'échange dont la portée s'exerce sur un plus grand nombre de voisins que celle que l'on trouve généralement dans les cristaux magnétiques isolants (premiers et seconds voisins). En ce sens, il présente une ressemblance avec les cristaux magnétiques conducteurs. Pour ces corps les résultats expérimentaux obtenus à l'aide d'ultrasons s'interprètent à l'aide de la théorie des modes couplés. Il est intéressant de savoir s'il en est de même pour Cr_2O_3.

Le sesquioxyde de chrome possède la structure corindon, sa maille élémentaire est rhomboédrique. Il passe de l'état paramagnétique à l'état antiferromagnétique à une température de 308°K, mais elle dépend de la pureté du cristal[7]. En-dessous de la température de Néel, l'ordre antiferromagnétique est décrit par un modèle à deux sous-réseaux ; l'axe de facile aimantation est l'axe ternaire du cristal. Il est de plus anisotrope ($H_A/H_E \sim 3.10^{-4}$).

Enfin, la transition de Néel de Cr_2O_3 a été très peu étudiée, seul le coefficient critique de la fonction de corrélation à deux opérateurs de spin $\langle S(R_i,t)\, S(0,0) \rangle$ a été déterminé aux neutrons

pour $T > T_N$ [8]. Les autres coefficients critiques ne semblent pas connus.

2 - Théorie

2.1 - Processus d'interaction

2.1.1 - Mécanisme de Waller

Ondes longitudinales : Leur propagation dans un cristal déplace les ions par rapport à leur position moyenne ce qui entraîne une variation de leur distance relative r . Tous les mécanismes d'interaction entre spins dépendant de r (échange direct, superéchange, interaction dipolaire magnétique, couplage par le champ de phonons etc...) sont modulés par les ondes ultrasonores et produisent donc un couplage.

Ondes transversales : La propagation de ces ondes déplace les ions par rapport à leur position moyenne, mais, il n'y a pas au premier ordre variation de leur distance relative ; donc le couplage, du type précédent, est très faible.

2.1.2 - Mécanisme de Van Vleck

L'onde ultrasonore module le champ cristallin auquel sont soumis les ions magnétiques. Il en résulte une modulation du mouvement orbital qui par interaction spin-orbite couple les spins aux ultrasons.

Dans ce cas, c'est la partie quadratique en variables de spins,au moins pour S > 1, qui est prépondérante, elle s'écrit :

$$H_{int} = \sum_{\alpha\beta\gamma S} G_{\alpha\beta\gamma S} \; S_\alpha \; S_\beta \; \varepsilon_{\gamma S}$$

où $\varepsilon_{\gamma S}$ est la déformation et $G_{\alpha\beta\gamma S}$ le tenseur des constantes de couplage. La symétrie du tenseur $G_{\alpha\beta\gamma S}$ est celle de la symétrie du site de l'ion magnétique.

2.2 - Divers types de théories

Il existe deux groupes de théories : les théories classiques[9] et les théories des modes couplés[10] [11]. Dans les

premières, on considère que la propagation ultrasonore est uniquement affectée par les fluctuations du paramètre d'ordre. Dans les secondes, on admet que près de la transition tous les modes hydrodynamiques peuvent interagir. En particulier, le mode hydrodynamique ultrasonore est couplé avec les fluctuations du paramètre d'ordre, de la densité d'énergie etc...

Pour une théorie donnée, les résultats varient d'ailleurs suivant la grandeur relative de la pulsation ultrasonore et de l'inverse d'un temps τ . Ce temps peut être soit un temps de relaxation spin-phonon lorsque les ondes ultrasonores sont couplées aux fluctuations d'énergie, soit un temps caractéristique des fluctuations du paramètre d'ordre dans le cas où celui-ci est prépondérant.

Les théories classiques n'ont abordé que le domaine des basses fréquences ($\omega\tau << 1$) ; par contre les théories des modes couplés ont obtenu des résultats pour les domaines basse fréquence ($\omega\tau << 1$) [10], intermédiaire ($\omega\tau \sim 1$) et haute fréquence ($\omega\tau >> 1$) [11].

2.2.1 - Basse fréquence.

On obtient alors aussi bien pour les théories classiques que pour les théories des modes couplés une expression de la forme :

$$\Delta\alpha = B' \omega^n \varepsilon^{-y} \qquad [1]$$

$\Delta\alpha$ est la variation d'atténuation critique due à la transition magnétique, ω est la pulsation ultrasonore, ε est la température réduite, C la capacité calorifique magnétique, y un exposant critique et n l'exposant de la pulsation. Dans les théories basse fréquence, n est toujours égal à 2.

En ce qui concerne la variation de vitesse de phase, elle présente dans les deux cas la même expression :

$$\frac{\Delta V}{V_0} \sim - \omega^0 C = -\omega^0 \varepsilon^{-\alpha} \qquad [2]$$

où C est la capacité calorifique due au spin et α son coefficient critique.

En tenant compte de l'expression complète des égalités [1] et [2], on trouve :

$$\alpha_p = - \frac{\Delta\alpha \; V_o}{\omega^n \; \frac{\Delta V}{V_o}}$$

2.2.2 - Fréquence intermédiaire ($\omega\tau \sim 1$)

On obtient :

$$\Delta\alpha \sim \varepsilon^{3\nu-2} \; \omega \left[b_o \left(\frac{\omega}{\Omega_k} \right) - b_1 \left(\frac{\omega}{\Omega_k} \right)^{3/2} \right]$$

$$\frac{\Delta V}{V_o} \sim V_o \; \varepsilon^{3\nu-2} \left(\frac{\omega}{\Omega_k} \right)^{3/2}$$

ν est le coefficient critique de la longueur de corrélation et Ω_k est l'inverse du temps caractéristique des fluctuations de spins pour le vecteur d'onde k de la fluctuation, b_o et b_1 sont des constantes définies positives.

2.2.3 - Régime haute fréquence ($\omega\tau >> 1$)

En admettant l'hypothèse d'échelle forte, on obtient tous calculs faits [11] :

$$\alpha(\omega) \sim \varepsilon^{o} \; \omega$$

$$\frac{\Delta V}{V_o} \sim \varepsilon^{o} \; \omega$$

3 - Dispositif expérimental et précision des mesures.

3.1 Production d'ultrasons

Pour une polarisation longitudinale les ultrasons ont été

produits par des transducteurs de ZnO. Ces transducteurs sont déposés sur des monocristaux de corindon taillés perpendiculairement à l'axe ternaire. Ils sont constitués d'une couche de ZnO dont les épaisseurs sont calculées en fonction des impédances acoustiques du corindon, du métal et de l'oxyde de zinc[12]. L'ensemble est alors collé à son extrémité libre sur Cr_2O_3 à l'aide de plexol.

Etant donné l'excellent rendement des transducteurs de ZnO, il suffit de faibles puissances hyperfréquences pour obtenir un niveau ultrasonore élevé. Un cylindre en cuivre électrolytique de diamètre 30mm et de longueur 120mm sert à assurer l'homogénéité en température. Le logement de l'ensemble corindon-cristal est un cylindre concentrique au précédent de diamètre 6mm. Sa surface interne et le cristal d'oxyde d'aluminium forment un guide sous coupure pour la puissance hyperfréquence, en effet λ_{hyp} varie dans ces expériences de 0,2 à 3 mètres.

La puissance hyperfréquence à l'emplacement de Cr_2O_3, donc sur la résistance de mesure (voir Fig.1), est négligeable. Ceci a été vérifié en faisant varier la puissance hyperfréquence incidente, il n'en est résulté ni variation de la résistance de mesure , ni variation de l'atténuation ou de la vitesse de phase.

Pour obtenir des ultrasons de polarisation tranversale, nous avons utilisé une cavité et un quartz de coupe AC collé avec du salol sur Cr_2O_3. Dans ce cas, la puissance hyperfréquence dans la cavité est plus de 100 fois supérieure à celle utilisée avec les transducteurs de ZnO; le logement du quartz AC a aussi été utilisé comme guide sous coupure et les mêmes vérifications que dans le cas de la polarisation longitudinale ont été effectuées avec les mêmes résultats.

3.2 - Mesures d'atténuation et de vitesse de phase.

Les mesures d'atténuation ont été faites après calibration du système de deux façons différentes :

- d'une part en choisissant un niveau de référence et en mesurant l'atténuation par rapport à ce niveau (le zéro est vérifié pour chaque mesure).

- d'autre part en mesurant la différence d'atténuation entre deux impulsions.

Les deux procédés sont utilisés simultanément pour la détermination des asymptotes et, tant que la variation d'atténuation ne dépasse pas 15 dB/cm, on obtient une erreur maximum de 0,1 dB/cm. Lorsque la variation d'atténuation augmente au-delà de cette valeur, l'erreur maximum est alors de 0,3 dB/cm.

Les mesures de variation de vitesse de phase sont effectuées à l'aide d'un interféromètre à ultrasons[13]. Avec ce dispositif il est possible d'obtenir une précision de 10^{-5} à la fréquence de 1 GHz pour un parcours de 1cm des ondes ultrasonores dans le cristal.

3.3 - Mesure de la température.

La régulation de température est obtenue par un système électronique qui contrôle le courant circulant dans le système de chauffage. L'ensemble permet d'obtenir une régulation meilleure que 0,001°K pendant plusieurs heures.

Pour la mesure de température, une résistance de platine collée directement sur Cr_2O_3 sert de sonde. Elle a été étalonnée après l'expérience en mesurant sa résistance pour différentes températures par comparaison avec des étalons secondaires. Toutes les mesures ont été faites dans l'échelle internationale pratique de 1968. Les valeurs choisies ont été 0°C, 100°C, ce qui est conforme aux spécifications de l'échelle[14]. De plus, sa résistance a été mesurée pour dix valeurs de la température situées près du point critique. En utilisant la norme des moindres carrés, ses coefficients α, δ, ont été calculés.

4 - Résultats expérimentaux.

Le cristal utilisé a été fabriqué par Cristal TEC du C.E.A Grenoble. D'après ses fabricants, il est d'une pureté de l'ordre de 10^{-5}. Il a une longueur de 4,85 mm. Ses faces sont orientées par rapport aux axes cristallographiques binaire et ternaire avec une précision supérieure à la minute.

Les expériences ont été faites, à la fois pour l'atténuation et la variation de vitesse de phase, pour des fréquence comprises entre 0,1 GHz et 1,5 GHz pour des ondes de polarisation longitudinale se propageant suivant l'axe ternaire, et pour des fréquences comprises entre 0,1 et 1 GHz pour des ondes de polarisarion longitudinale se propageant suivant l'axe binaire (Figs.2 et 3). Elles ont été faites à la fréquence de 650 MHz pour des ondes de polarisation transversale se propageant suivant les axes binaire et ternaire.

4.1 - Atténuation.

4.1.1 - Polarisation longitudinale.

Suivant l'axe ternaire, la variation d'atténuation croît de 2 dB/cm à 0,1 GHz à plus de 60 dB/cm à 1,5 GHz. L'absorption des ultrasons augmente donc de façon considérable près de la transition. De plus, la courbe d'absorption est très étroite en température (de l'ordre de 0,2 K à mi-hauteur pour un GHz suivant l'axe ternaire)

Les variations d'atténuation aux fréquences étudiées sont représentées sur les figures 2 pour l'axe binaire et 3 pour l'axe ternaire.

On constate que l'amplitude du maximum d'atténuation est une fonction croissante de la fréquence et que sa température, que nous désignerons par T_M, se déplace vers les basses températures lorsque ω augmente. Toutefois, ce déplacement en température est relativement faible ; il n'atteint à la fréquence 1 GHz que 0,055°K suivant l'axe ternaire et 0,09°K suivant l'axe binaire.

4.1.2 - Polarisation transversale.

Les expériences ont été faites à 650 MHz dans les conditions décrites ci-dessus. Aucune variation d'atténuation n'a pu être observée.

4.2. - Variation de vitesse de phase.

4.2.1 - Polarisation transversale.

Les expériences ont été faites à 650 MHz pour des ondes de polarisation transversale se propageant suivant les axes binaire et ternaire, aucune variation de vitesse de phase n'a été observée.

4.2.2 - Polarisation longitudinale.

Avec cette polarisation, il y a une variation sensible de la vitesse de phase. (Le changement total de $\frac{\Delta V}{V_o}$ dû à la transition est de l'ordre de 3.10^{-3}).

Les figures 4 et 5 représentent la variation de $\Delta V/V_o$ respectivement suivant les axes binaire et ternaire en fonction de T sur une gamme de température étendue. Les figures 6 et 7 montrent la variation de $\Delta V/V_o$ pour les axes binaire et ternaire, elles constituent une vue agrandie de la partie proche de T_N des figures 4 et 5. Sur ces schémas, il est facile d'observer qu'il existe un minimum en-dessous de la température de transition et que son amplitude décroît quand la fréquence croît. Enfin la température à laquelle le mininum apparaît est toujours inférieure à celle où le maximum d'atténuation a lieu. La différence de température entre ces deux extrema est faible puisqu'elle est égale à 0,045°K à 0,785 GHz suivant l'axe ternaire.

4.3 - Détermination des asymptotes et de la température critique.

Pour exploiter ces résultats, il est nécessaire de déterminer d'une part, l'asymptote en fonction de la température de l'atténuation et du déphasage , d'autre part la température de transition.

4.3.1 - Asymptote de l'atténuation.

Dans le cas de Cr_2O_3, trouver l'asymptote ne présente aucune problème car la variation de l'atténuation est pratiquement linéaire sur plus de 70°K de part et d'autre de la température de transition.

4.3.2 - Asymptote de la variation de vitesse de phase.

Les figures 4 et 5 représentent les variations de vitesse de phase jusqu'à des températures supérieures à T_N de 70°K. L'examen de cette courbe montre que dans sa partie haute température, elle présente une concavité orientée vers l'axe des T. Lorsque l'effet des fluctuations se fait sentir, sa pente change. Ces caractéristiques de la courbe permettent de déterminer l'asymptote sans ambiguïté. Sa forme parabolique suggère d'utiliser un polynôme de second degré pour représenter la variation de $\Delta V/V_o$ en fonction de la température. Les coefficients de ce polynôme ont été calculés en utilisant la norme des moindres carrés. Ils sont respectivement égaux à :

$A_b(2) = 2,91 \ .10^{-4}$ $\qquad$ $A_b(1) = 5,41 \ .10^{-}$

$A_t(2) = 2,69 \ .10^{-4}$ $\qquad$ $A_t(1) = 4,79 \ .10^{-7}$

pour les termes du second et du premier degré des asymptotes des axes binaire et ternaire.

La courbe en traits continus des figures 4 et 5 représente cette asymptote.

4.3.3 - Détermination de la température critique.

La température critique d'un cristal dépend de la nature et de la concentration des impuretés qu'il contient. Cette influence semble nette dans Cr_2O_3 [7].

La méthode adoptée pour déterminer T_N consiste à remarquer que la température du maximum d'atténuation croît quand la fréquence décroît, donc en extrapolant à fréquence nulle la variation de température du maximum d'atténuation, on obtient la température critique [15].

Les précautions suivantes ont été prises pour limiter les erreurs :

- Les températures correspondant au maximum d'atténuation pour les différentes fréquences ont été mesurées successivement sans interruption de l'expérience.

- Durant la mesure, aucune modification du dispositif expérimental et, à fortiori, aucun décollage de la résistance de platine servant à la mesure de température n'ont été faits.

Cette façon de procéder a été rendue possible par l'utilisation des couches de ZnO, l'une de celles-ci possédant une largeur de bande suffisante pour permettre les mesures à toutes les fréquences considérées. La valeur absolue de T_N calculée par ce procédé est égale à $T_N = 307.60 \pm 0.01°K$.

5 - Interprétation des résultats.

5.1 - Largeur de la transition.

La largeur en température de la transition étudiée avec les ultrasons est définie ici comme la largeur à mi-hauteur de la courbe constituée de la variation d'atténuation pour $T > T_N$ et de sa partie symétrique pour $T < T_N$. Pour Cr_2O_3, elle est de 0,2 °K à 1 GHz alors qu'elle vaut 0,3°K pour $RbMnF_3$ [15], à 0,39 GHz seulement. Pour MnF_2 [16], cette largeur atteint 26°K à 1 GHz suivant l'axe (001). Si on la compare au cas de ces antiferromagnétiques, la transition est donc étroite.

Mais, la largeur en température d'une transition de phase est en général reliée à la portée des interactions, elle est d'autant plus étroite que la portée des interactions est plus grande. Le comportement de la transition de Cr_2O_3 vue aux ultrasons semble donc indiquer que des interactions d'une portée plus grande que celle entre premiers voisins interviennent dans ce cristal. Les expériences de diffusion des neutrons [6] ont montré que l'intégrale d'échange entre dixièmes voisins n'était pas négligeable. Les résultats obtenus ici sont donc compatibles avec ceux des neutrons.

5.2 - Atténuation pour $T > T_N$

5.2.1 - Polarisation transversale.

Avec cette polarisation, il n'y a aucune variation d'atténuation. On a vu que pour ces ondes, le mécanisme de Waller est toujours inopérant (la variation de la distance des ions est du second ordre). L'absence d'effet sur l'atténuation permet donc d'affirmer que l'autre mécanisme celui de Van Vleck, est négligeable ici. Il l'est donc vraisemblablement aussi pour des ondes longitudinales.

5.2.2 - Polarisation longitudinale.

Axe ternaire : Le tracé de Log α en fonction de Log ε donne la figure 8. Elle met en évidence une dépendance linéaire de Log α en fonction de Log ε pour ε variant de 3.10^{-5} à 10^{-3}. Dans cette gamme de température l'exposant de la dépendance en fréquence est approximativement 2 jusqu'à 1,5 GHz. Cet exposant incite à penser que l'on est dans le régime basse fréquence, cette déduction est d'ailleurs fortement étayée par la variation de vitesse de phase qui est insensible à la fréquence et donc en accord total avec les théories basses fréquences.

La valeur de y déduite de la figure 8 est comprise entre 1,2 et 1,4 suivant la fréquence considérée. Pour un cristal antiferromagnétique anisotrope (cas de Cr_2O_3), les théories des modes couplés prévoient $y = 4/3$ ($y = 1$ pour un cristal antiferromagnétique isotrope) dans le cas basse fréquence et les théories classiques $y = \frac{3}{2}$ (17). Les résultats présentés ici sont donc en bon accord avec les théories des modes couplés basse fréquence. Le comportement de Cr_2O_3 est donc plus proche de celui des conducteurs magnétiques (Cr, Ni...) que de celui des isolants (MnF_2, $RbMnF_3$).

Cet accord n'est pas limité aux exposants critiques. On a vu dans la partie théorique que la variation d'atténuation ultrasonore près de la transition s'exprime sous la forme :

La constante B" est calculée dans la théorie des modes couplés basse fréquence[10], pour une onde longitudinale elle est égale à

$$B'' = \frac{4\pi^2 C_I \rho k_B T_N \gamma^2}{\xi_o^3} \left(\frac{1}{T_N} \frac{dT_N}{dp} \right)^2 \tau_o$$

où

C_I est la vitesse longitudinale des ultrasons $\sim 8.10^5$ cm/s suivant l'axe C.

ξ_o est la longueur de corrélation à haute température.

ρ masse volumique (de l'odre de 5 g/cm^3).

T_N est la température de Néel, ici $T_N \sim 308°K$.

γ est le coefficient critique de la susceptibilité, ici $\gamma \sim 1,4$ est évalué dans cette publication.

$\frac{dT_N}{dp}$ est la variation de la température critique en fonction de la pression; cette grandeur a été mesurée sur des poudres de Cr_2O_3[19], elle est donc certainement un peu sous évaluée $\frac{dT_N}{dp} = 1,6°K/Kbar$.

kB est la constante de Boltzman.

Pour faire ce calcul, il faut évaluer ξ_o , τ_o et la variation d'atténuation correspondante.

Nous avons supposé que ξ_o était donné par la valeur de $\xi = \xi_o \varepsilon^{-\nu}$ pour le ε maximum où cette loi était vérifiée aux neutrons. Avec cette méthode nous avons trouvé $\xi_o \sim 3$ Å.

Le même principe a été adopté pour la détermination de τ_o où nous avons pris la valeur de $\tau_F = \tau_o \varepsilon^{-\gamma}$ pour la valeur maximum de ε où cette loi est vérifiée aux ultrasons (puisque, à notre connaissance, il n'existe pas d'autre détermination) et nous avons utilisé les résultats concernant τ_F mesuré ci-dessous; $\tau_o \sim 10^{-11}$. Pour l'évaluation de α, la variation

en ε a été limitée à celle où elle est expérimentalement observée à 0,1 GHz. (Voir fig.2) (nous avons choisi la plus basse fréquence de façon à être le plus proche de la condition basse fréquence). Compte tenu de ces valeurs, nous trouvons $\Delta\alpha_1 \sim 1{,}3$ dB/cm. Il est facile de voir sur la figure 2 que cette valeur est très proche du résultat expérimental (1,5 dB/cm).

Enfin une question intéressante est d'essayer de déterminer si la théorie de K. Kawasaki est vérifiée dans le cas haute fréquence[11]. Si nous admettons que la variation du temps caractéristique de fluctuation est de la forme $\tau_F = \tau_o \varepsilon^{-\gamma}$ jusqu'à T_N pour une valeur de ε suffisamment petite, on devrait atteindre le régime haute fréquence. C'est ainsi que suivant l'axe ternaire entre 0,3 et 1,5 GHz et pour $\varepsilon < 10^{-4}$ la dépendance en température est approximativement en ε^o mais la dépendance en fréquence n'est pas en ω. De plus, cette variation se produit sur au plus une demi-décade. Il en résulte que Cr_2O_3 n'est probablement pas le cristal idéal pour vérifier la théorie de modes couplés haute fréquence, il est donc impossible d'en tirer argument pour confirmer ou infirmer la théorie.

Axe binaire : Le tracé de Log α en fonction de Log ε donne la figure 9. Jusqu'à 200 MHz, la dépendance en fréquence est voisine de n = 2. Comme pour l'axe ternaire, on peut être tenté d'en conclure que les théories basse fréquence sont vérifiées d'autant que la variation de vitesse de phase (Fig.9) est indépendante de la fréquence. L'exposant y est compris entre 1,2 et 1,35, ce qui est très proche du résultat des théories des modes couplés satisfaisant $\omega\tau_F << 1$.

Pour les fréquences supérieures à 0,5 GHz, n n'est plus égal à 2, il est même inférieur à 1. On peut donc penser que le régime intermédiaire est atteint, ceci est corroboré par le calcul de τ_F effectué ci-dessous pour l'axe ternaire : $\tau_F = 0{,}7 10^{-10}$ d'où $\omega\tau_F \sim 0{,}2$ à 0,5 GHz.

En ce qui concerne la vérification éventuelle de la théorie des modes couplés haute fréquence, la conclusion est la même que pour l'axe ternaire.

5.3- Variation de vitesse de phase pour $T > T_N$.

Comme nous l'avons vu lors de la présentation des résultats expérimentaux, quelle que soit la fréquence, les courbes se superposent jusqu'à la proximité immédiate de T_N. Cet accord entre la théorie et l'expérience est d'ailleurs souvent vérifié quand il est possible d'attribuer l'interaction spin-phonon à la modulation de l'intégrale d'échange[2].

Si l'on compare les figures 6 et 7, on observe une légère dispersion de $\frac{\Delta V}{V_o}$ près de T_N pour la propagation suivant l'axe binaire Ceci est compatible avec le fait que la loi en ω^2 pour l'atténuation n'est plus vérifiée pour $f > 200$ MHz.

La variation de Log $\frac{\Delta V}{V}$ en fonction de Log ε donne la figure 10 pour l'axe binaire et la figure 11 pour l'axe ternaire. Pour ces deux axes, il y a dépendance linéaire entre Log $\frac{\Delta V}{V_o}$ et Log ε pour ε variant de 10^{-5} à 3.10^{-3}. Cette droite du graphe log-log détermine le coefficient critique de la variation de vitesse de phase qui est aussi le coefficient critique de la capacité calorifique de spin d'après les résultats théoriques précédents.

On trouve ici une valeur de α qui est égale à 0,14 pour l'axe ternaire et 0,12 pour l'axe binaire. Ces valeurs sont compatibles avec les lois d'échelle puisque inférieures à 0,18. Les résultats obtenus précédemment sur différents corps magnétiques[20] indiquent que les exposants critiques de la capacité calorifique de spin de la plupart des corps magnétiques ont une valeur très voisine de celle trouvée ici.

5.4 - Evaluation du coefficient γ .

Dans le cas d'un cristal antiferromagnétique anisotrope, le coefficient y est égal à $\gamma - \alpha$. Nous avons déterminé expérimentalement y qui est de l'ordre de 1,3 ; nous avons également déterminé α qui est égal à 0,14 d'où nous déduisons que γ est de l'ordre de 1,4. Cette valeur est compatible avec les résultats expérimentaux[20] qui donnent une valeur voisine de 1,3 dans la plupart des antiferromagnétiques.

5.5 - Détermination du temps caractéristique des fluctuations pour $T > T_N$.

Dans les considérations théoriques developpées ci-dessus, on a déduit l'expression de τ_F en fonction de la variation de vitesse de phase et de la variation d'atténuation

$$\tau_F = \frac{V_o}{\omega^n} \frac{\Delta\alpha}{\frac{\Delta V}{V_o}}$$

En se plaçant suivant l'axe d'ordre 3 à 305 MHz et pour $\varepsilon = 3.10^{-4}$, on obtient $\tau_F : 0.7\ 10^{-10}$, ce qui donne pour $\omega\tau_F$ la valeur 0.4 à 1 GHz ; on est donc, à cette fréquence, dans la région intermédiaire.

5.6 - Interprétation des résultats pour $T > T_N$.

Si l'on compare les résultats expérimentaux obtenus dans Cr_2O_3 et MnF_2, on observe des comportements similaires.

Dans les deux cas, il existe un maximum d'atténuation dont l'amplitude croît avec la fréquence. Ce déplacement est de l'ordre de 10°K à 1 GHz pour MnF_2, il n'est que de quelques centièmes de °K pour Cr_2O_3.

La variation de vitesse de phase présente dans les deux corps un maximum de variation qui a tendance à disparaître quand la fréquence augmente.[16]

Ces comportements parallèles conduisent à penser que l'origine du phénomène est la même, avec évidemment des paramètres différents. L'étude de la largeur du mode critique n'a pas été faite aux neutrons, il est donc impossible actuellement d'essayer d'interpréter les résultats en terme de couplage Landau-Khalatnikov comme cela a été fait pour MnF_2[21].

6 - Conclusion.

La transition de Cr_2O_3 étudiée aux ultrasons est très étroite en température, ceci implique, en accord avec les résultats de la

diffusion des neutrons que les interactions ne se limitent pas à celles entre premiers voisins, mais qu'elles ont une portée sensiblement supérieure.

La variation d'atténuation est due essentiellement à la magnétostriction en volume. Son coefficient critique a été mesuré, il a une valeur de 1,3, ce qui est en bon accord avec la théorie des modes couplés. D'autre part, la théorie donne l'ordre de grandeur de la constante B.

La variation de vitesse de phase est en bon accord avec les théories des modes couplés basse fréquence ($\omega\tau_F << 1$). Son coefficient critique α qui, d'après la théorie, est celui de la capacité calorifique de spin a été mesuré. Cette mesure s'effectue avec une facilité et une précision supérieures à celles de la méthode directe.

Utilisant l'égalité $y = \gamma - \alpha$ et ayant déterminé y et α, il a été possible de donner l'ordre de grandeur de γ qui est proche de la valeur 4/3 généralement observée dans les antiferromagnétiques.

Combinant les résultats de l'atténuation et de la vitesse de phase, on a déduit le temps caractéristique des fluctuations de spin voisin de 7.10^{-11} sec. pour $\varepsilon = 3.10^{-4}$.

Enfin pour $T < T_N$, bien que le comportement soit qualitativement semblable à celui de MnF_2, il n'est pas possible actuellement d'interpréter les résultats en terme de processus de Landau-Khalatnikov car l'étude du comportement des modes critiques n'a pas été faite avec les neutrons.

Remerciements

Les auteurs ont bénéficié au cours de ce travail des encouragements du Dr.J. Joffrin et du Dr.A. Levelut ainsi que d'intéressantes discussions sur l'interprétation physique des phénomènes. Ils tiennent à remercier le Pr.B. Lüthi et le Pr.C.W. Garland pour de stimulantes conversations sur certains points théoriques et expérimentaux, ainsi que sur l'envoi de leurs preprints avant publication.

BIBLIOGRAPHIE

(1) JOFFRIN J. Berichte der Bunsen Gesellschaft für physikalische Chemie, 76 (1972) 268.

(2) LÜTHI B, MORAN T.J. and POLLINA R.J. J. Phys.Chem.Solids 31 (1970) 1741.

(3) LUTHI B and POLLINA R.J. Phys.Rev.Lett. 22 (1969) 717.
KAWASAKI K. Phys.Lett. 29A (1969) 406.

(4) HUBER D.L. Phys.Rev. B3 (1971) 836.

(5) STATZ H, RIMAI L, WEBER M.J, and DEMARS G.A. J. Appl.Phys. 32 (1961) 218 S.

(6) SAMUELSEN E.J, HUTCHINGS M.T. and SHIRANE G. Physica 48 (1970) 13.

(7) HONDA K and STONE T. Sci. Rep.Tohoku Imp.Univ. 3 (1914) 233.

(8) RISTE T and WANIC A. Phys.Lett. 16A (1965) 231.

(9) BENNETT H.S. Phys.Rev. 185 (1969) 801.
KAWASAKI K. Solid State Commun. 6 (1968) 57.
KASHCHEEV V.N. Phys.Lett. 25A (1967) 71.

(10) LARAMORE G.E, KADANOFF L.P. Phys.Rev. 187 (1969) 619.

(11) KAWASAKI K. Phys.Rev. A3 (1971) 1097.

(12) BACRI J.C. Thèse de 3ème Cycle , Paris (1969).

(13) GUERMEUR R, JOFFRIN J, LEVELUT A, PENNE J. Phys.Lett, 13A (1964) 107.

(14) Echelle Internationale Pratique de Températures de 1968. Metrologia 5 (1969) N° 2.

(15) MORAN T.J. and LÜTHI B. Phys.Rev. B4 (1971) 122.

(16) BACHELLERIE A., FRENOIS Ch. A paraître.

(17) Pour les théories classiques, la valeur de y a été établie en tenant compte de l'expression de l'atténuation $\alpha \sim \omega^2 C\tau_F$ et en utilisant la valeur de τ_F donnée pour un antiferromagnétique anisotrope (cas de Cr_2O_3) [10]. Si l'on prend $\gamma = 2/3$, cette expression conduit à la valeur $y = 2$ qui est le résultat donné par K. Kawasaki[9], si, au contraire, on prend la valeur strictement classique $\gamma = 1/2$, on trouve $y = 3/2$ qui est celle donnée dans (2).

(18) IKUSHIMA A. Phys.Lett. 29A, (1969) 364.

(19) WORLTON T.G., BRUGGER R.M., BENNION R.B., J. Phys.Chem.Solids 29 (1968) 435.

(20) KADANOFF L.P., GOTZE W, HAMBLEN D, RECHT R, LEWIS E.A.S., PALCIAUSKAS V.V., RAYL M, SWIFT J., Rev.Mod.Phys. 39 (1967) 395.

(21) BACHELLERIE A., LEVELUT A, JOFFRIN J., Phys.Rev.Lett. 30 (1973) 617.

LEGENDES DES FIGURES

Fig.1 : La partie supérieure représente les positions respectives du générateur d'ultrasons, du cristal , de la résistance de mesure de température dans le logement du cristal. La partie inférieure montre l'ajustement du système générateur dans le manchon chauffant.

Fig.2 : Variation d'atténuation en dB/cm pour une onde ultrasonore de polarisation longitudinale se propageant suivant l'axe binaire.

Fig.3 : Variation d'atténuation en dB/cm pour une onde ultrasonore de polarisation longitudinale se propageant suivant l'axe ternaire. La courbe pour 15/8 MHz a été tracée par transmission, sa partie supérieure n'est pas représentée ici.

Fig.4 : Variation de la vitesse de phase d'ultrasons de polarisation longitudinale se propageant suivant l'axe binaire. Seuls les résultats concernant la plus basse et la plus haute fréquence auxquelles ont été faites les expériences sont représentées ici. La courbe en trait continu représente l'asymptote calculée.

Fig.5 : Variation de la vitesse de phase d'ultrasons de polarisation longitudinale se propageant suivant l'axe ternaire. Seuls les résultats concernant la plus basse et la plus haute fréquence auxquelles ont été faites les expériences sont représentées ici. La courbe en trait continu représente l'asymptote calculée.

Fig.6 : Elle représente la variation de vitesse de phase pour une onde de polarisation longitudinale se propageant suivant l'axe binaire. Bien que les mesures aient été faites aux mêmes fréquences que pour l'atténuation, pour la clarté de la figure seules trois fréquences sont représentées.

Fig.7 : Elle représente la variation de vitesse de phase pour une onde de polarisation longitudinale se propageant suivant l'axe ternaire. Bien que les mesures aient été faites aux mêmes fréquences que pour l'atténuation, pour la clarté de la figure seules trois fréquences sont représentées.

Fig.8 : Représentation sur un graphe Log-Log de la variation de l'atténuation en dB/cm d'une onde longitudinale se propageant suivant l'axe ternaire en fonction de $\varepsilon = \left\{ \frac{T-T_N}{T_N} \right\}$. Les valeurs de y sont respectivement suivant les valeurs croissantes de la fréquence : 1,27; 1,32; 1,36; 1,41; 1,28.

Fig.9 : Représentation sur un graphe Log-Log de la variation de l'atténuation en dB/cm d'une onde longitudinale se propageant suivant l'axe binaire en fonction de $\varepsilon = \left\{ \frac{T-T_N}{T_N} \right\}$. Les valeurs de y sont dans l'ordre croissant des fréquences : 1,33; 1,35; 1,35; 1,32; 1,31.

Fig.10 : Graphe Log-Log de la variation de vitesse de phase d'une onde longitudinale se propageant suivant l'axe binaire en fonction de ε. Seule la fréquence inférieure et la fréquence supérieure étudiées au cours de ces expériences sont représentées. On trouve $\alpha = 0,12$.

Fig.11 : Graphe Log-Log de la variation de vitesse de phase d'une onde longitudinale se propageant suivant l'axe ternaire en fonction de ε. Seule la fréquence inférieure et la fréquence supérieure étudiées au cours de ces expériences sont représentées. On trouve $\alpha = 0,14$.

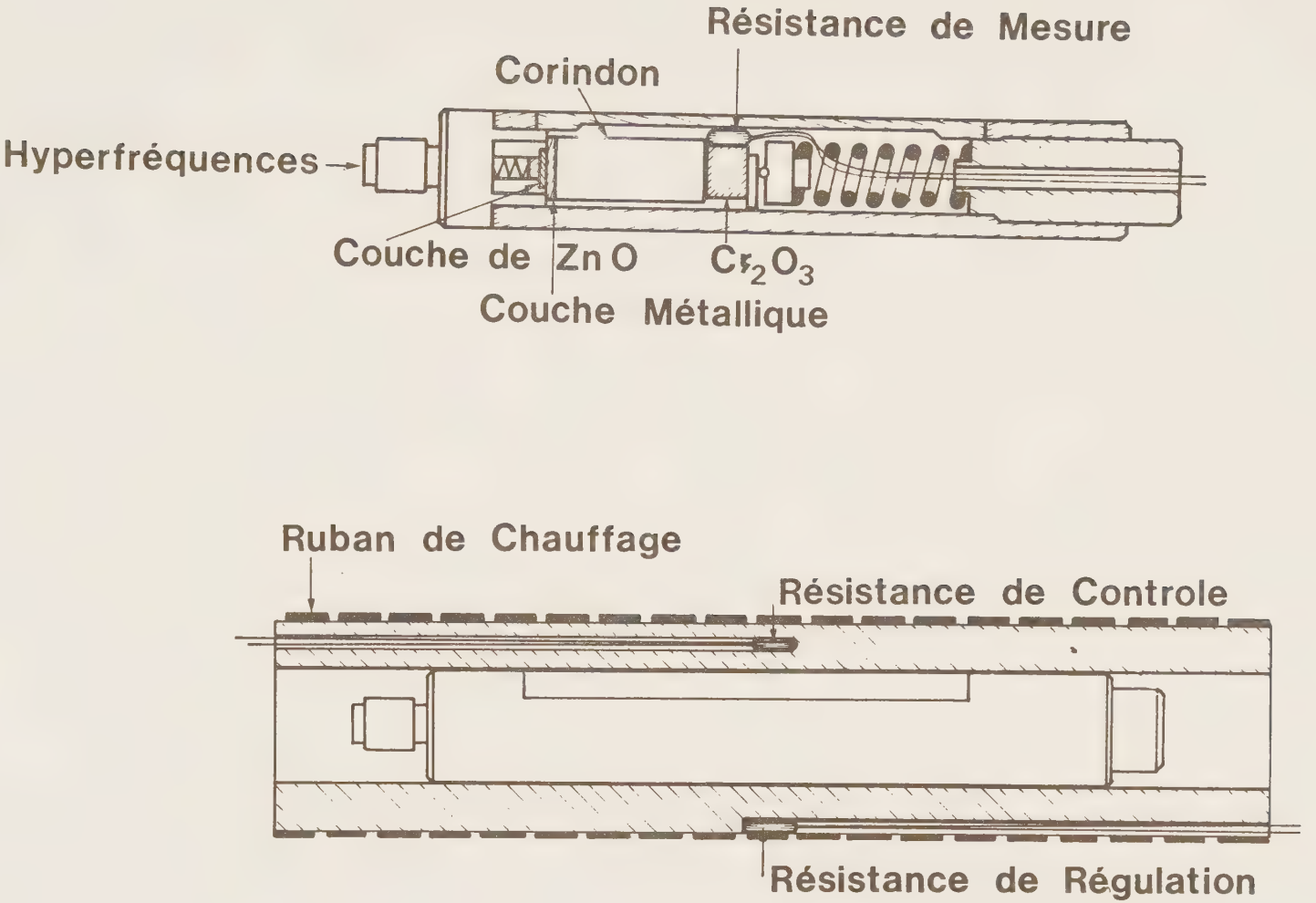

Résistance de Mesure
Corindon
Hyperfréquences
Couche de Zn O
Cr_2O_3
Couche Métallique
Ruban de Chauffage
Résistance de Controle
Résistance de Régulation

FIG.1

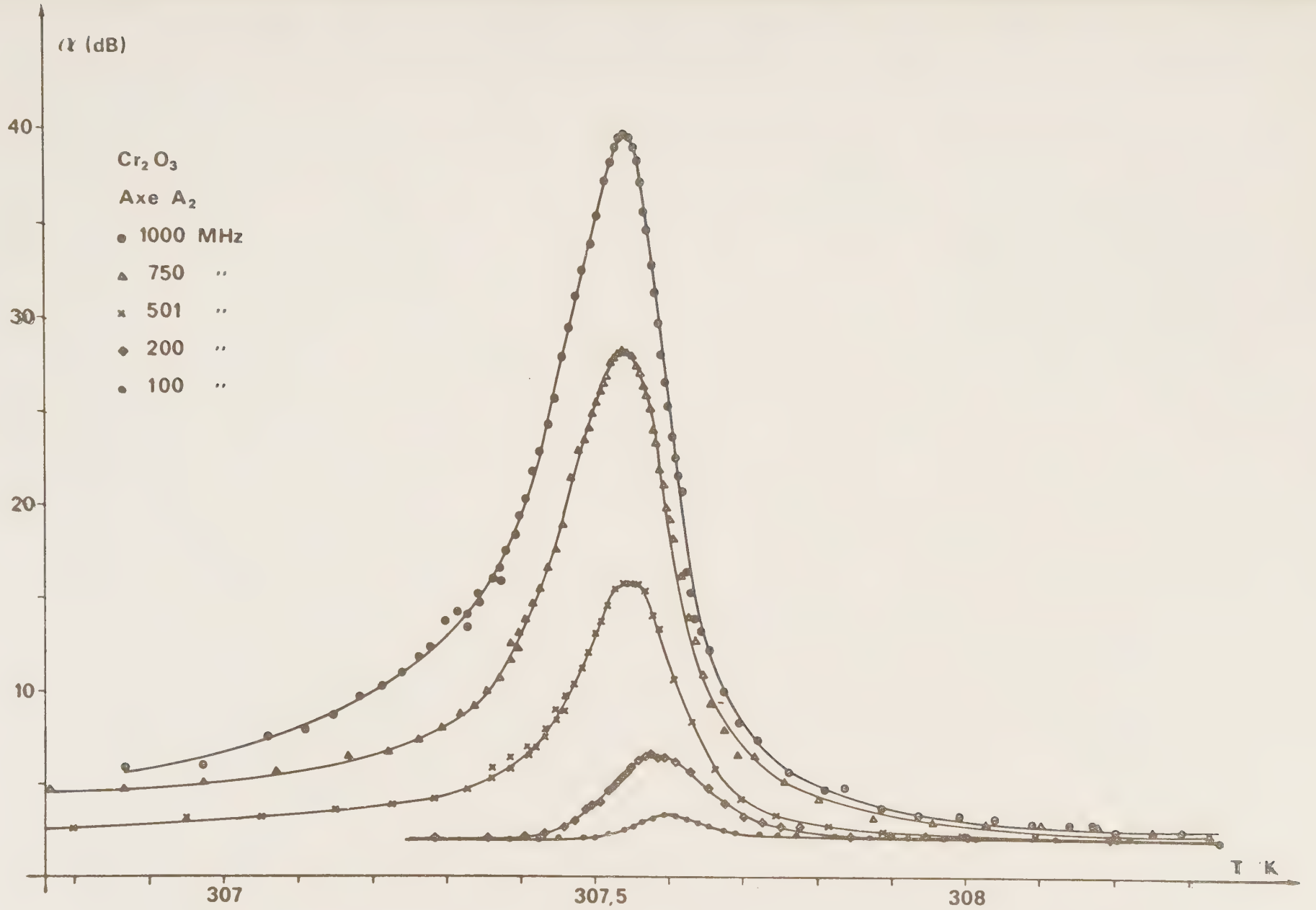

α (dB)
40
30
20
10
Cr_2O_3
Axe A_2
1000 MHz
750 ''
501 ''
200 ''
100 ''
307
307,5
308
T K

FIG. 2

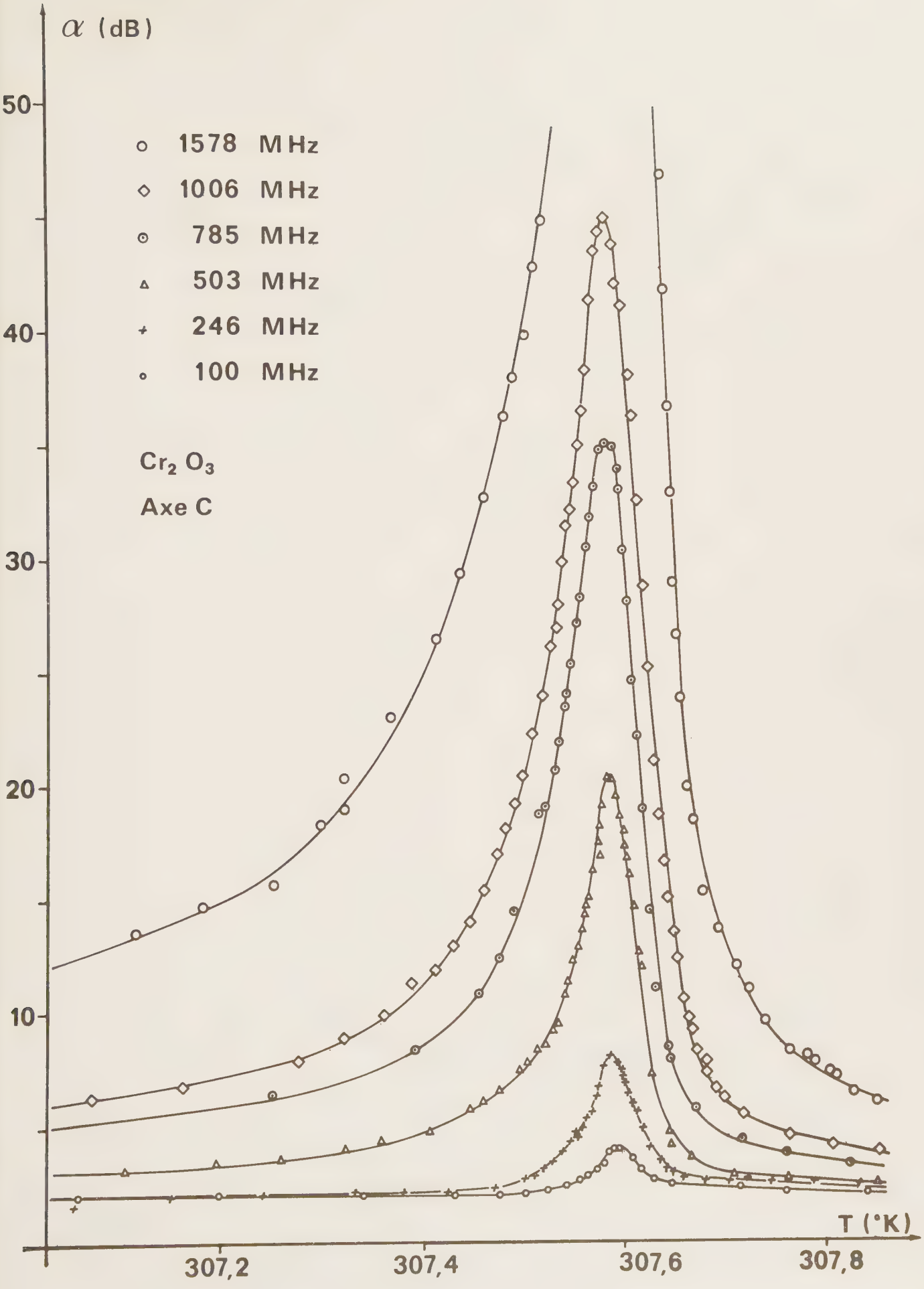
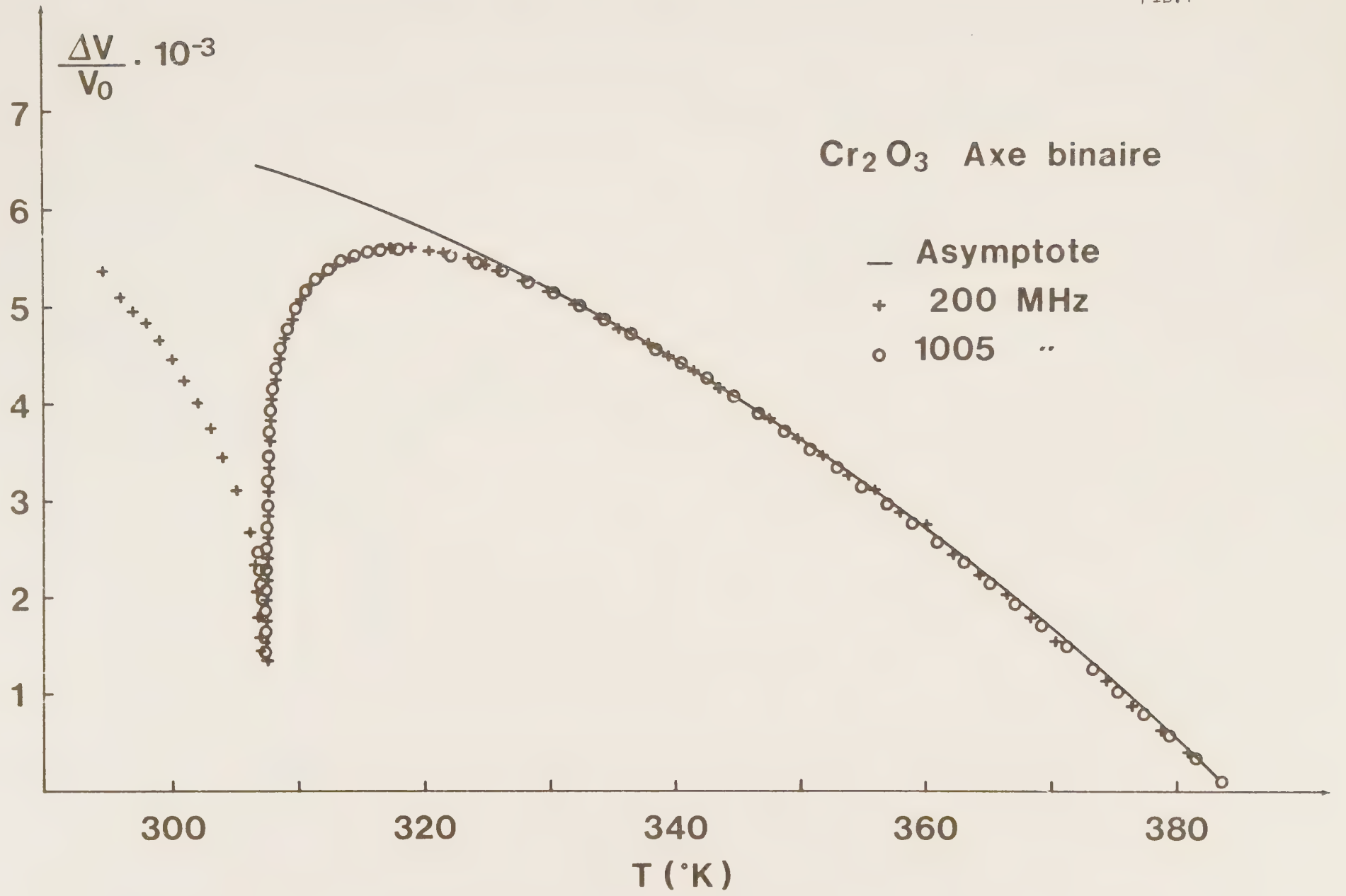

α (dB)
50
40
30
20
10
1578 MHz
1006 MHz
785 MHz
503 MHz
246 MHz
100 MHz
Cr2 O3
Axe C
T (°K)
307,2
307,4
307,6
307,8

FIG.3

FIG.4


$\frac{\Delta V}{V_0} \cdot 10^{-3}$
7
6
5
4
3
2
1
Cr_2O_3 Axe binaire
Asymptote
200 MHz
1005 ..
300
320
340
360
380
T (°K)

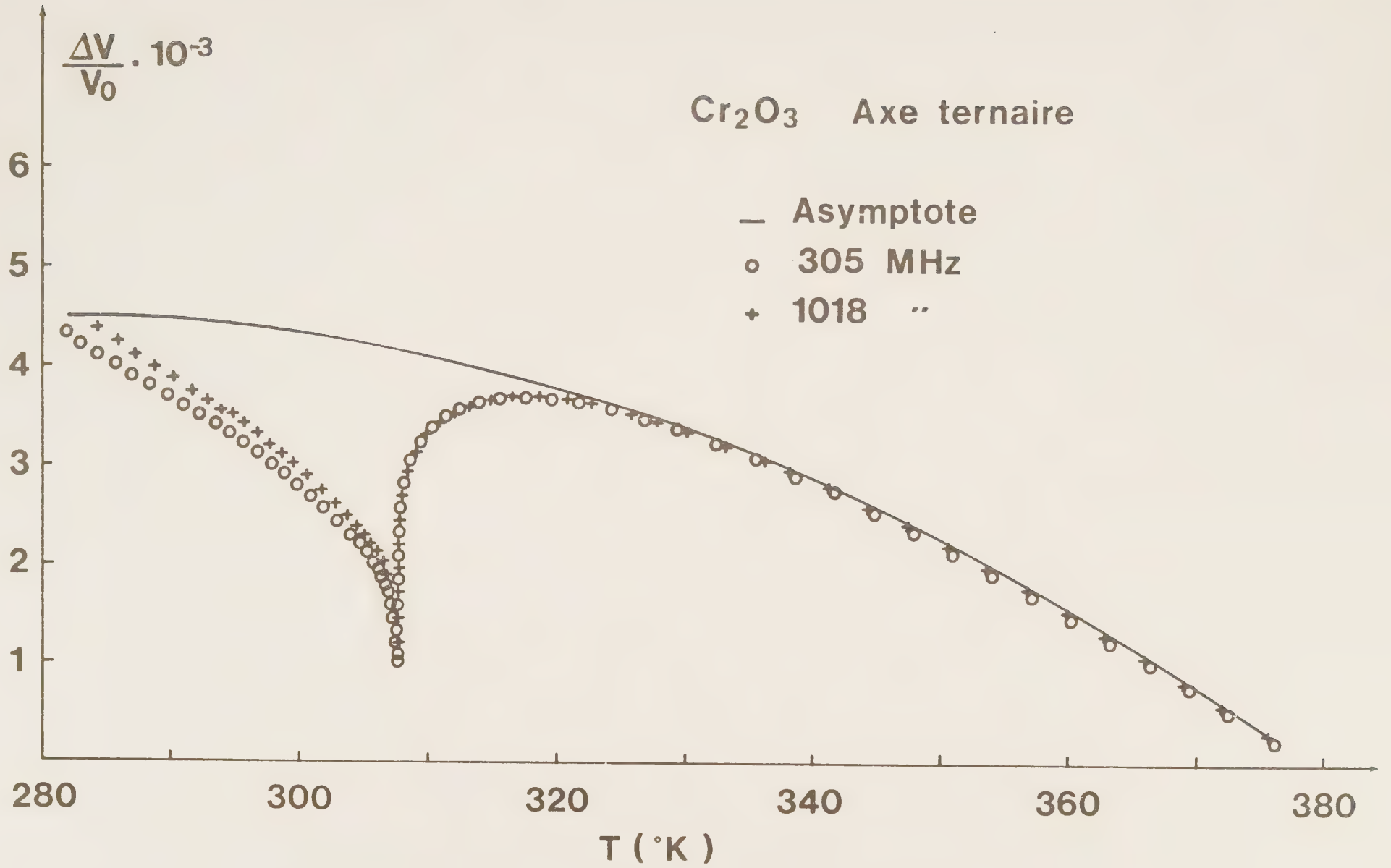

ΔV/V0 . 10-3
Cr2O3 Axe ternaire
Asymptote
305 MHz
1018 ..
6
5
4
3
2
1
280
300
320
340
360
380
T (°K)

FIG.5

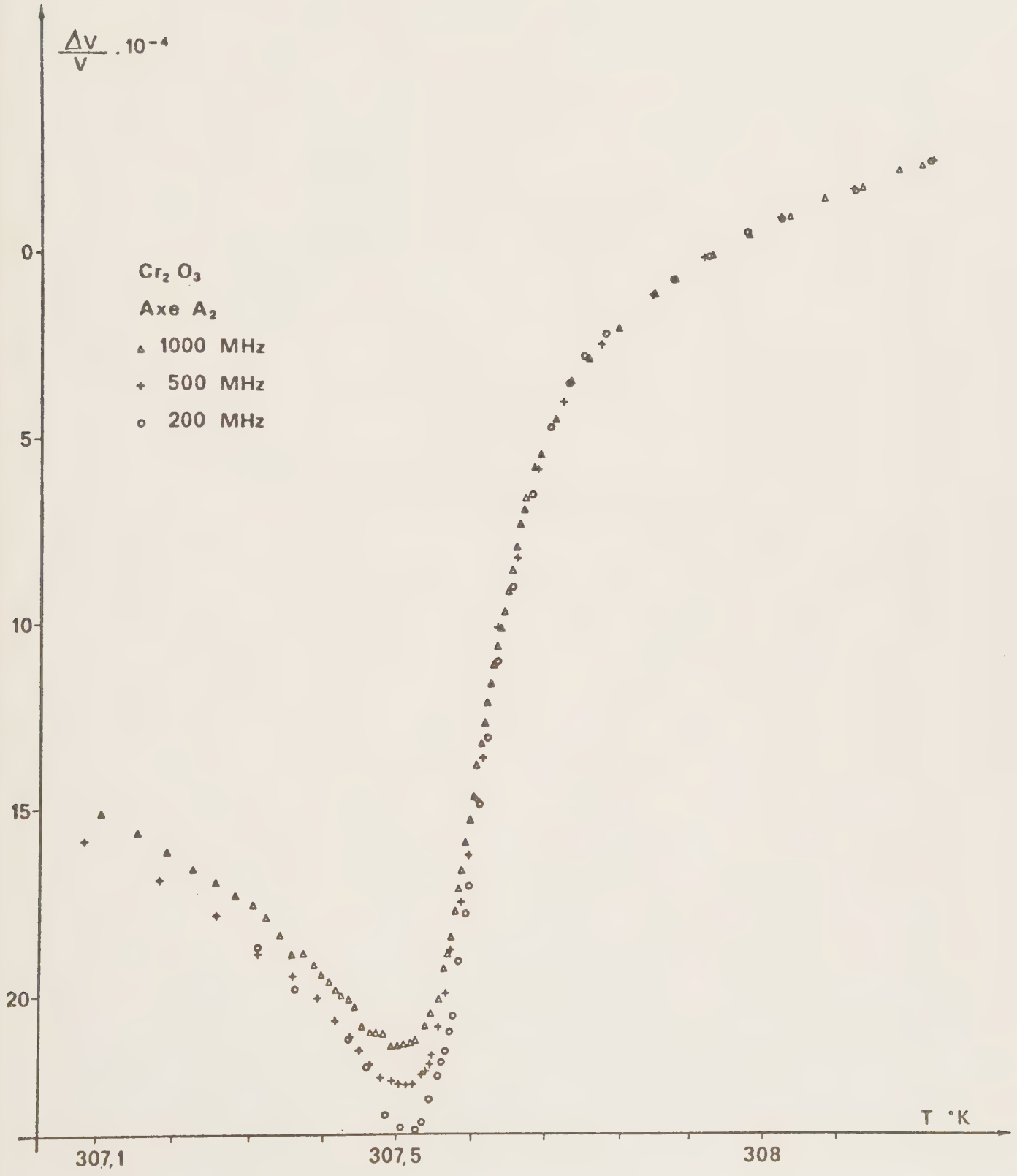

$\frac{\Delta V}{V} . 10^{-4}$
0
5
10
15
20
$Cr_2 O_3$
Axe A_2
1000 MHz
500 MHz
200 MHz
T °K
307,1
307,5
308

FIG.6

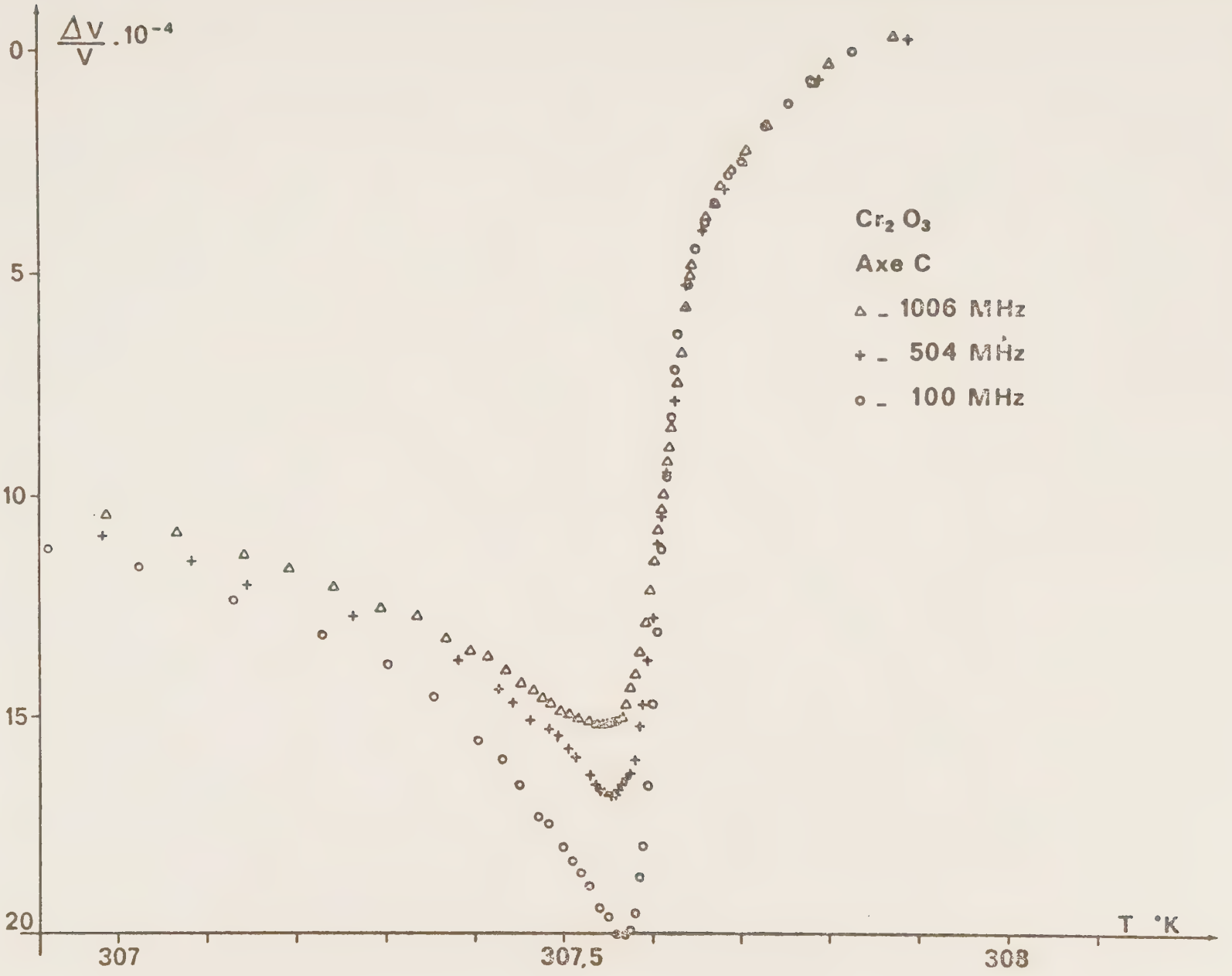

$\frac{\Delta V}{V} . 10^{-4}$
0
5
10
15
20
307
307,5
308
T °K
$Cr_2 O_3$
Axe C
△ _ 1006 MHz
+ _ 504 MHz
○ _ 100 MHz

FIG.7

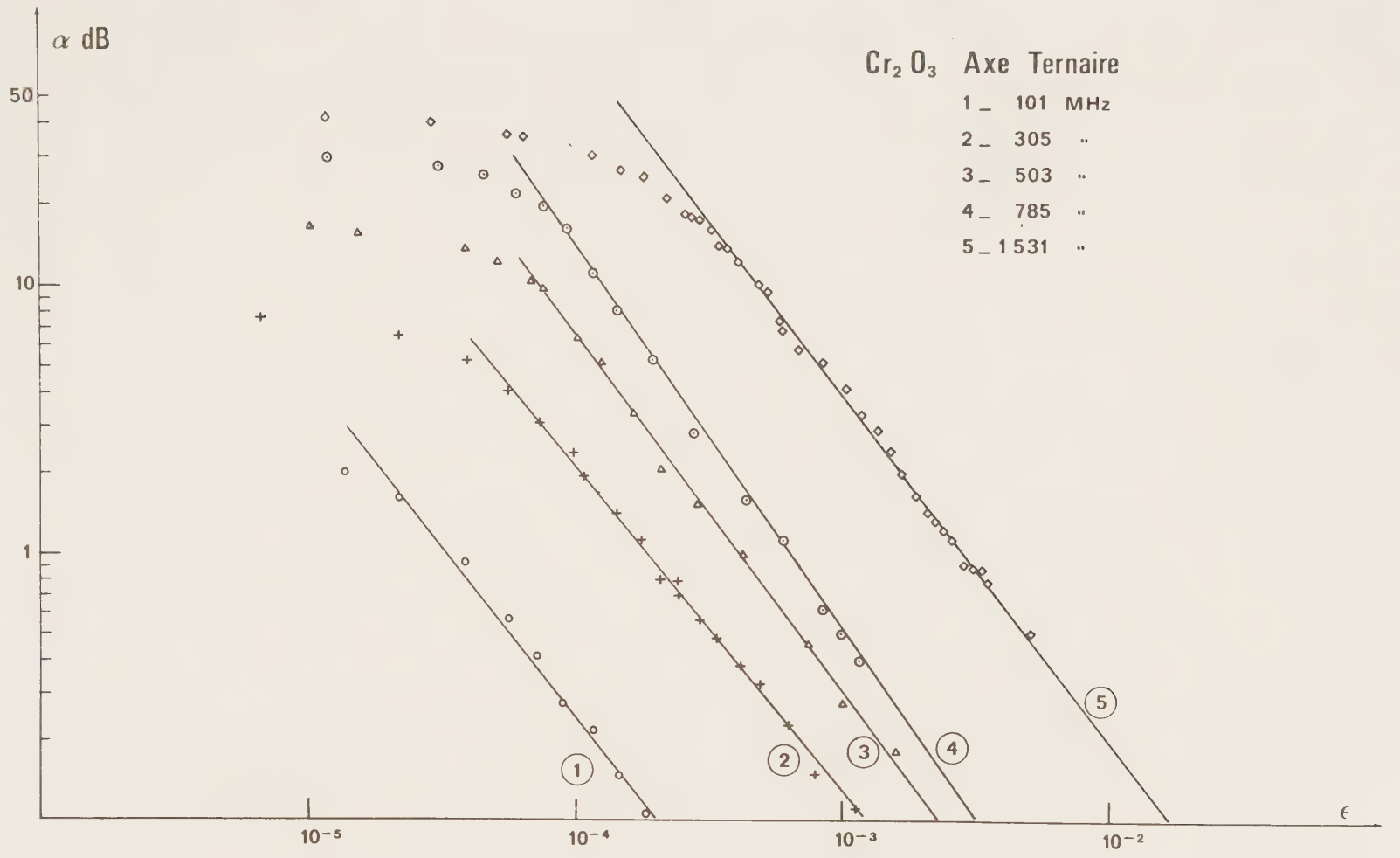

α dB
50
10
1
Cr2 O3 Axe Ternaire
1 _ 101 MHz
2 _ 305 "
3 _ 503 "
4 _ 785 "
5 _ 1531 "
1
2
3
4
5
10-5
10-4
10-3
10-2
ε

FIG.8

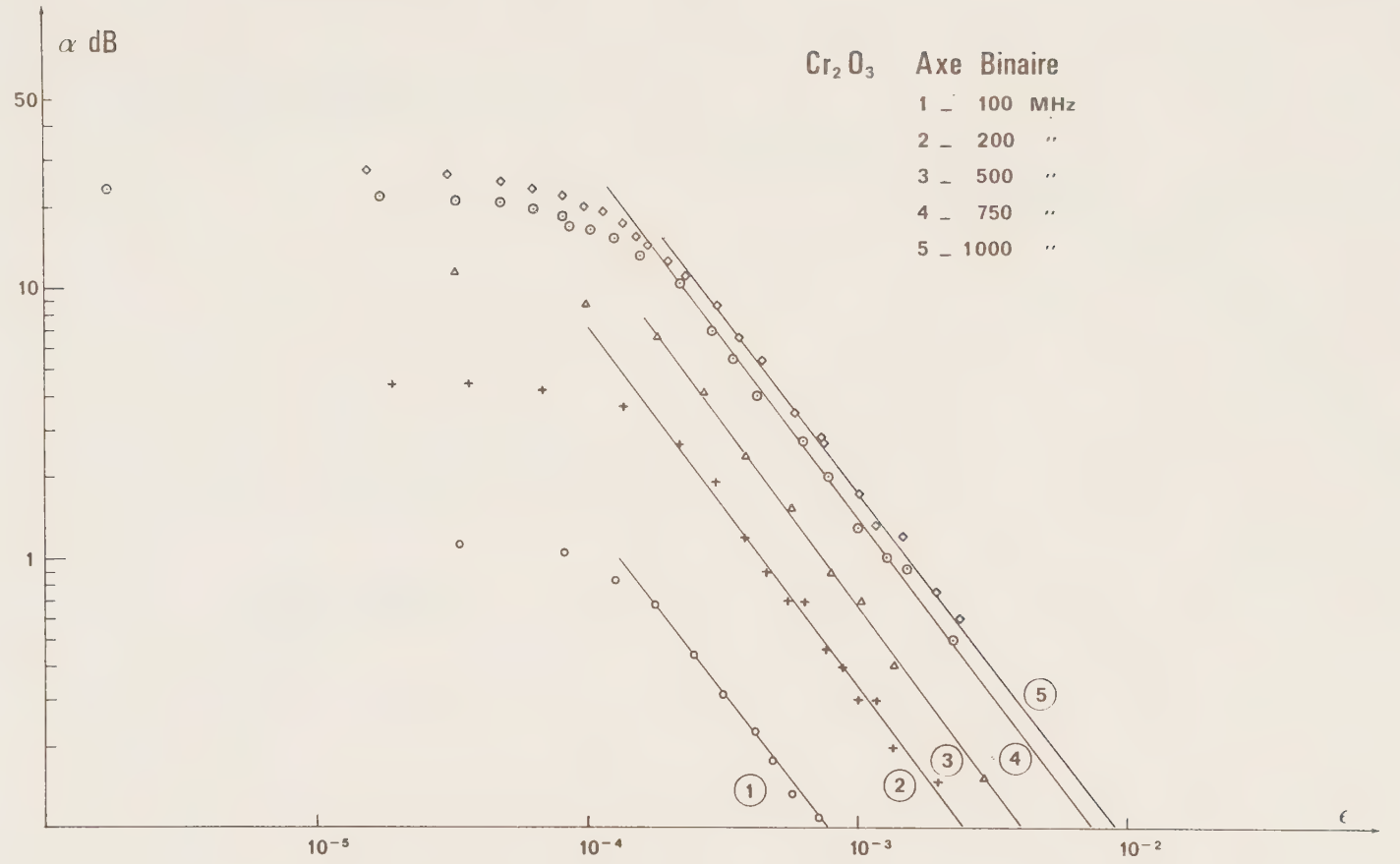

α dB
50
10
1
Cr_2O_3 Axe Binaire
1 _ 100 MHz
2 _ 200 ''
3 _ 500 ''
4 _ 750 ''
5 _ 1000 ''
1
2
3
4
5
10^{-5}
10^{-4}
10^{-3}
10^{-2}
ε

FIG.9

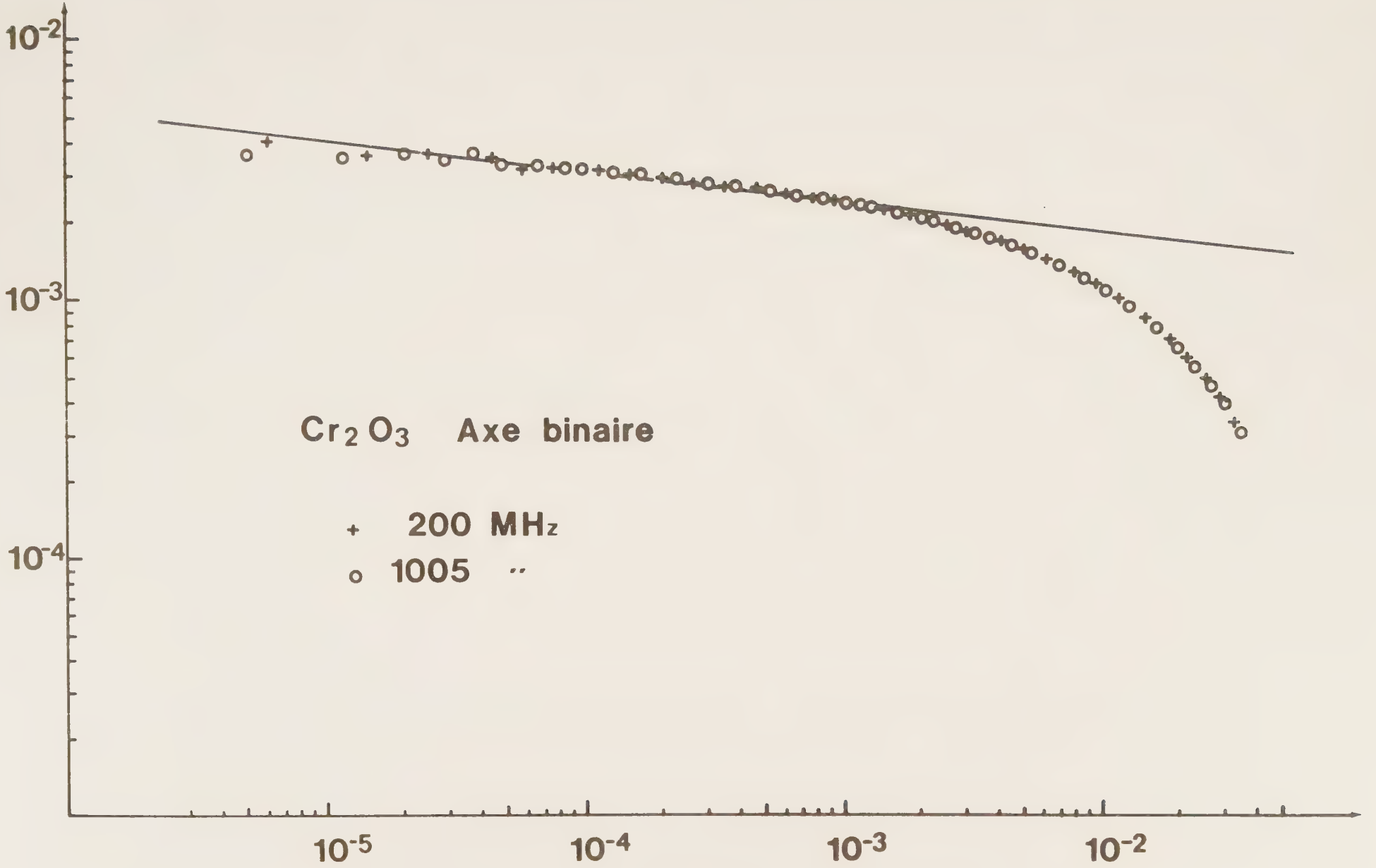


FIG.10

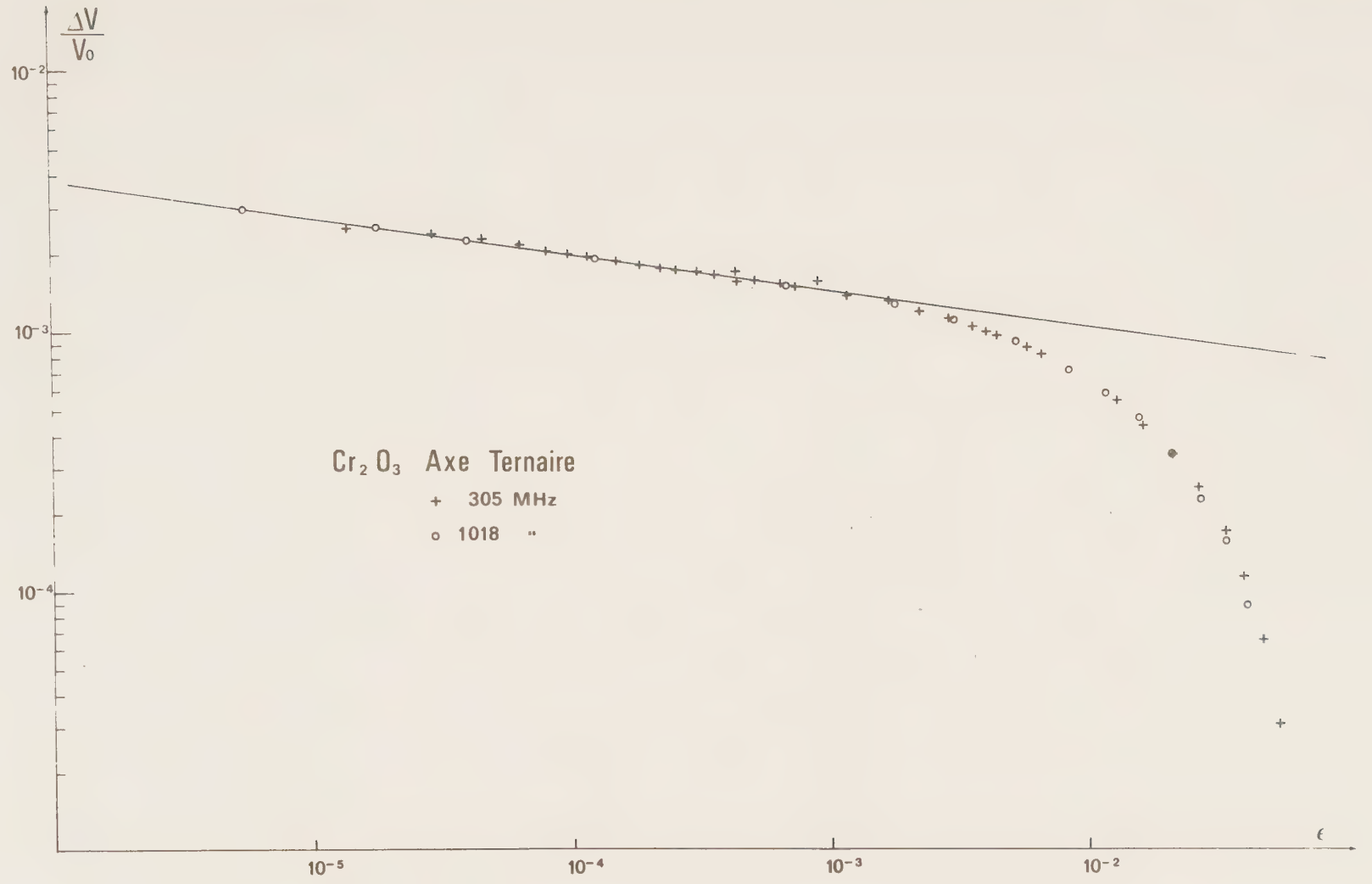

ΔV/V0
10-2
10-3
10-4
Cr2 O3 Axe Ternaire
+ 305 MHz
o 1018 "
10-5
10-4
10-3
10-2
ε

FIG.11

PUBLICATION SOUMISE AU "JOURNAL DE PHYSIQUE"

N° 73-04

4

ETUDE DE LA TRANSITION DE NEEL DE MnF_2 AVEC DES ONDES ACOUSTIQUES DE HAUTE FREQUENCE

A. BACHELLERIE et Ch. FRENOIS
Laboratoire d'Ultrasons *, Université Paris VI, 75230 Paris Cedex 5, France.

* Equipe de Recherche associée au Centre National de la Recherche Scientifique.

1 - Introduction

Un effort théorique et expérimental très important a été fait ces dernières années pour étudier les transitions de phase. Parmi les nombreuses méthodes expérimentales utilisées, la propagation d'ondes ultrasonores a été appliquée aux liquides et aux solides. Cette méthode fournit en général des informations sur le comportement critique des fonctions de corrélation de diverses grandeurs physiques en même temps qu'elle permet la mesure de quelques coefficients thermodynamiques tels que la dilatation et la chaleur spécifique.

Une théorie souvent utilisée pour rendre compte des résultats expérimentaux est celle des modes couplés [1]. Elle suppose l'existence de différents modes hydrodynamiques et elle tente de calculer leurs interactions; dans le cas des transitions magnétiques, on est amené à prendre en compte les fluctuations du paramètre d'ordre et les fluctuations de la densité d'énergie. Pourtant dans certains cas, le couplage des ultrasons avec l'un ou l'autre de ces modes prédomine. C'est ainsi que dans les conducteurs magnétiques, le couplage avec les fluctuations du paramètre d'ordre est seul responsable des effets observés [2] (le paramètre d'ordre dans une transition de Néel est l'aimantation macroscopique de chaque sous-réseau). L'exposant concernant la variation d'atténuation en fonction de la température réduite ($\varepsilon = (T-T_c)/T_c$ est compris entre 1 et 1,6. Au contraire, dans les isolants, l'interaction des ultrasons avec les fluctuations d'énergie est le processus dominant ; l'exposant de la variation d'atténuation en fonction de la température réduite est toujours faible et inférieur à 0,5.

Les expériences faites dans les composés magnétiques l'ont presque toujours été dans le domaine basse fréquence ($\omega\tau << 1$) où τ est le temps caractéristique des fluctuations dominantes et ω la fréquence des ultrasons. Quelques rares expériences ont atteint le domaine des fréquences intermédiaires ($\omega\tau \sim 1$) et très peu, le régime des hautes fréquences ($\omega\tau >> 1$).

Dans le cas de MnF_2, les fluctuations de la densité d'énergie relaxent en un temps voisin de 3.10^{-9} s.[3], si bien que jusqu'à maintenant les expériences publiées se rapportent au régime $\omega\tau < 1$.

Les expériences présentées ici se situent au contraire dans le domaine haute fréquence $\omega\tau > 1$ et elles s'étendent jusqu'à 1 GHz. Pourtant cette inégalité n'est vraie que pour la gamme de température où τ a été déterminé, c'est-à-dire de T_N + 0,02°K à T_N + 1,2°K.

Pour $T \lesssim T_N$, les résultats expérimentaux sont peu nombreux et leur interprétation pour divers cristaux n'est pas liée directement aux phénomènes critiques. Dans certains cas, il faut chercher l'origine de l'atténuation observée dans l'interaction avec les spins nucléaires[4] ; dans d'autres cas, le couplage avec les ondes de spins[5] apparaît prépondérant.

Les résultats présentés ici pour MnF_2 seront quant à eux interprétés en termes de couplage de Landau-Khalatnikov : on entend par là un couplage entre la déformation élastique appliquée au cristal et une composante(linéaire) de fluctuation du paramètre d'ordre.

MnF_2 est un antiferromagnétique à deux sous-réseaux de structure quadratique ; son axe de facile aimantation est l'axe C, sa température de Néel est voisine de 67,4°K. Ce cristal a été l'objet de nombreuses études théoriques et expérimentales. Tous ses coefficients critiques ont été déterminés ; de plus le comportement des fonctions de corrélation à deux opérateurs de spin a été étudié aux neutrons[6]

en fonction de la température. Ces résultats seront utilisés pour l'interprétation des mesures présentées ici.

1.1-Présentation théorique du phénomène d'atténuation ultrasonore critique.

L'étude théorique de la propagation d'ultrasons près d'une transition de phase a conduit à deux types de théories : les théories classiques et celles des modes couplés. Dans les premières, on ne tient compte que du couplage des ultrasons avec les fluctuations du paramètre d'ordre. Dans les théories des modes couplés, on prend en compte l'interaction de tous les modes hydrodynamiques existant près de la transition avec les ondes ultrasonores. En fait, dans les transitions de phase magnétiques du second ordre, on ne tient compte que du couplage des ondes élastiques avec la densité d'énergie et avec les fluctuations du paramètre d'ordre.

L'interaction des ultrasons avec les fluctuations d'énergie est en fait prépondérant dans MnF_2 , et c'est à ce cas simple qu'on limitera l'exposé ci-dessous.

Ce processus est prépondérant lorsque l'hamiltonien d'interaction est proportionnel à l'hamiltonien d'échange, cela suppose en outre que le couplage des déformations élastiques avec un seul ion (mécanisme de Van Vleck) soit négligeable devant celui dû à la magnétostriction en volume. Il sera prouvé plus loin que c'est précisément le cas de MnF_2. L'hamiltonien d'interaction spin-phonon peut alors s'écrire :

$$H_{s\text{-}ph} = \sum_i A\, e^{iqR_i}\, Z'_i\, b_i\, \vec{S}(0)\, \vec{S}(R_i) \qquad (1)$$

alors que l'hamiltonien d'échange a pour expression :

$$H_{ech} = \sum_i Z_i\, J_i\, \vec{S}(0)\, \vec{S}(R_i) \qquad (2)$$

où q et A sont respectivement le vecteur d'onde et la déformation acoustique.

Z_i est le nombre de voisins repérés par les vecteurs R_i pour un site O considéré.

Z'_i est le nombre de voisins intervenant dans l'interaction pour le site O.

D'une façon générale, l'atténuation s'écrit par l'application du théorème de fluctuation-dissipation :

$$\Delta\alpha(\omega) \sim \omega^2 \, \mathrm{Re} \int_0^{\infty} dt < f_q(t), f_q^*(o) > \exp - i\omega t \qquad (3)$$

où $f_q(t)$ est la force aléatoire agissant sur l'onde élastique. On fait souvent l'hypothèse que f est dominé par les fluctuations de grande longueur d'onde du paramètre d'ordre. Toutefois, quand l'hamiltonien d'interaction est partiellement ou totalement proportionnel à l'hamiltonien d'échange, f présente une dynamique différente qu'il importe de mettre en évidence.

La partie de f proportionnelle à la densité d'énergie H(q,t) donne une atténuation :

$$\Delta\alpha \sim \omega^2 \, \mathrm{Re} \int_0^{\infty} dt < H(q,t) \, H^*(q,o) > e^{-i\omega t} \qquad (4)$$

On démontre que [7]

$$< H(q,t), H(q,o)> = <H(q,o),H^*(q,o)> \; e^{-\Lambda q^2 t} \; e^{-\tau_L t} \qquad (5)$$

Avec Λ = constante de diffusion de l'énergie.

$$\Lambda = \frac{K_s}{C_s} \quad \text{et} \quad \tau_L = \frac{\gamma}{C_s}$$

γ = constante de Casimir et Dupré [8]

K_s = conductivité thermique due aux spins

C_s = capacité calorifique de spin.

Enfin l'hydrodynamique permet de montrer que

$$\langle H(q,o)\, H(q,o) = \frac{k_B T^2 V C_s}{1 + (\frac{q}{K})^2} \qquad (6)$$

avec k_B = constante de Boltzman

V = volume du cristal.

K = l'inverse de la longueur de corrélation.

d'où :

$$\Delta\alpha \sim \frac{\omega^2\, k_B T^2 V C_s}{1 + (\frac{q}{K})^2}\ \mathrm{Re}\left| \int_o^\infty e^{-(\Lambda q^2 + \tau_L)\ -i\omega t}\, dt \right| \qquad (7)$$

La partie réelle de l'intégrale est égale à :

$$\frac{\Lambda q^2 + \tau_L}{(\Lambda q + \tau_L)^2 + \omega^2} = \left\{ q^2 \frac{K_s}{C_s} + \frac{\gamma}{C_s} \right\} \Big/ \omega^2 + \left\{ q^2 \frac{K_s}{C_s} + \frac{\gamma}{C_s} \right\}^2 \qquad (8)$$

et l'expression de α :

$$\Delta\alpha \sim \frac{\omega^2 k_B T^2 V C_s}{1 + (\frac{q}{K})^2} \left\{ q^2 \frac{K_s}{C_s} + \frac{\gamma}{C_s} \right\} \Big/ \omega^2 + \left\{ q^2 \frac{K_s}{C_s} + \frac{\gamma}{C_s} \right\}^2 \qquad (9)$$

$$\sim \frac{k_B T^2 V}{1 + (\frac{q}{K})^2}\ \omega^2\, C_s^2 \left\{ \gamma + \frac{K_s \omega^2}{s^2} \right\} \Big/ 1 + \frac{(C_s)}{\left\{ \gamma + \frac{K_s \omega^2}{s^2} \right\}^2}$$

où s est la vitesse ultrasonore.

REMARQUES

1 - Cette expression n'est valable que pour $\frac{q}{K} \ll 1$ pour deux raisons. La première vient du fait que l'expression (3) de α n'est valable que si le théorème de fluctuation est applicable. La seconde est que l'expression (6) est calculée en supposant précisément que $\frac{q}{K} \ll 1$. En fait, cette dernière

condition est toujours réalisée pour la propagation d'ultrasons dans les corps magnétiques isolants, même aux hautes fréquences.

2 - En supposant que seule intervienne la relaxation spin-phonon, alors :

$$\Delta\alpha \sim \frac{k_B T^2 \bar{V}}{1+(\frac{q}{K})^2} \omega^2 C_s^2 \gamma \left| 1 + \left(\frac{\omega C_s}{\gamma}\right)^2 \right| \qquad (10)$$

avec $\tau_L = \frac{C_s}{\gamma}$

$\Delta\alpha$ peut se mettre sous la forme classique de l'atténuation associée à un processus de relaxation :

$$\Delta\alpha \sim \frac{k_B T^2 \bar{V}}{1+(\frac{q}{K})^2} C_s \gamma^2 \frac{\omega^2 \tau_L}{1+\omega^2 \tau_L^2} = A \frac{\omega^2 \tau_L}{1+\omega^2 \tau_L^2} \qquad (11)$$

2 - Dispositif expérimental et précision des mesures.

2.1 - Production d'ultrasons.

Les ultrasons sont engendrés grâce à des transducteurs de ZnO. Ces générateurs sont déposés soit directement sur le MnF_2, soit sur un corindon taillé perpendiculairement à l'axe ternaire. Dans ce dernier cas, le MnF_2 est collé sur le corindon à l'aide de 4 méthyle-1-pentène. Ce corps a une température de solidification très basse [9], il permet la dilatation du corindon et du MnF_2 sur une large gamme de température sans rupture du collage.

Les transducteurs sont constitués d'une couche métallique (Au ou Pt) et d'une couche piézoélectrique (ZnO) dont les épaisseurs sont calculées en fonction de l'impédance acoustique du matériau piézoélectrique, de la couche métallique et du support [10]. La surface interne du logement du cristal sert de guide sous coupure.

La puissance hyperfréquence à l'emplacement du cristal est négligeable et son influence sur le phénomène observé est nulle. La vérification en est facile : il suffit de réduire la puissance hyperfréquence fournie au transducteur et de mesurer l'effet de cette réduction sur les résultats expérimentaux. Ceux-ci s'y sont révélés dans tous les cas insensibles.

Le corindon, orienté suivant son axe ternaire, permet la propagation d'une onde longitudinale suivant cet axe et il impose une propagation en biais des ondes transversales (réfraction conique) Si le corindon est suffisamment long, on obtient donc toujours des ondes de polarisation longitudinale, même si la couche de ZnO émet des ondes des deux polarisations. Dans le cas où le transducteur est disposé directement sur le cristal de MnF_2, il y a génération simultanée d'ondes de polarisations transversales et longitudinales. Ceci est dû à une légère désorientation de la couche de ZnO par rapport à son support ; elle est difficile à éviter.

2.2 - Régulation de température.

La régulation est obtenue par un système qui implique à la fois un refroidissement non régulé de valeur moyenne réglable et un chauffage électroniquement contrôlé. Il impose la température avec une précision meilleure que 0,001°K pendant plusieurs heures.

La mesure de température est faite par une résistance collée directement sur le cristal de MnF_2. Cette résistance est étalonnée et les coefficients de variation de résistance en fonction de la température ont été calculés suivant la méthode définie dans l'échelle internationale pratique de 1968 [11]

Les mesures de cette résistance ont été contrôlées par celles d'une résistance de précision logée le plus près possible du cristal. Cette dernière résistance a été étalonnée à l'aide d'un thermomètre à gaz (He). La précision de la mesure en valeur absolue peut être estimée à ± 0.01°K au voisinage de T_N.

2.3 - Cristaux utilisés.

Les cristaux que nous avons utilisés pour ces expériences ont trois provenances :

- plusieurs nous ont été donnés par Mr.Legrand du Laboratoire de l'Orme de Merisiers, C.E.A. , Saclay. Leur qualité optique est bonne et l'étude entre polariseurs croisés ne révèle pas de tensions internes ; un cristal de même origine et fabriqué par le même procédé a été étudié aux neutrons, sa température critique a été déterminée[12], ce qui offre certaines possibilités de recoupements.

- un cristal nous a été donné par C.D.W. Wilkinson, nous ignorons sa provenance. Il se présentait sous la forme d'un parallèlipipède, base 5x5 mm et longueur 25 mm. Ses faces latérales étaient deux à deux et polies optiquement.L'examen entre polariseurs croisés n'a révélé aucune contrainte interne, son atténuation acoustique à haute température est faible.

- enfin un troisième cristal a été acheté chez Nuclear Metals.

Ces différents cristaux sont répertoriés dans le Tableau 1 par un numéro qui varie de 1 à 6. Les fréquences auxquelles ont été faites les expériences sont précisées. Les résultats qu'ils fournissent sont tous semblables.

3 - Résultats expérimentaux.

3.1 - Mesures d'atténuation.

3.1.1 - Polarisation transversale.

D'une façon générale, aucun effet critique n'est décelable quelle que soit la direction de propagation dans l'intervalle de température 20°K - 170°K. On a représenté sur les figures 2,3, 11 et 5 les résultats obtenus à des fréquences de 500 MHz ou 720 MHz, les courbes sont semblables pour les autres fréquences étudiées.

3.1.2 - Polarisation longitudinale.

Axe (0,01)

Les résultats concernant le cristal N°1 sont représentés sur la courbe N°1 pour les fréquences de 100, 200, 500 MHz ; sur la courbe N° 2 pour 720 MHz et sur la courbe N° 3 pour 1000 MHz.

Le cristal N°2 a été étudié aux fréquences de 200, 500 et 720 MHz. Il donne les mêmes résultats que le cristal N° 1 et seule l'atténuation à 720 MHz est représentée sur la fig.2.

Pour $T > T_N$, ces courbes présentent des caractères communs quelle que soit la fréquence.

- Toutes ont une asymptote en température pratiquement linéaire. Cette asymptote présente une pente assez forte.

- La largeur de la transition (mesurée à mi-hauteur en prenant pour $T < T_N$ la courbe symétrique de la variation d'atténuation à $T > T_N$) est approximativement constante.

- La variation totale d'atténuation à T_N reste pratiquement contante pour un axe donné.

Pour $T < T_N$, on remarque qu'au-delà de 0,2 GHz, il apparaît un maximum d'atténuation à une température $T_M < T_N$. La différence $\Delta T_M = T_N - T_M$ croît avec la fréquence. D'autre part, l'amplitude de ce maximum est également une fonction croissante de la fréquence (les valeurs numériques de $\Delta\alpha_{max}$ et de ΔT_M en fonction de la fréquence sont données dans le tableau N°2.) Ce phénomène présente une grande amplitude puisque $\Delta\alpha \simeq$ 60 dB/cm à 1 GHz (la méthode adoptée pour mesurer $\Delta\alpha$ sera précisée ultérieurement). Il prédomine alors devant la partie de l'atténuation qu'on a l'habitude d'appeler critique ; le comportement haute fréquence de l'atténuation devient radicalement différent de celui noté à basse fréquence. Enfin, entre 13 et 50°K, la pente de la variation d'atténuation augmente avec la fréquence. En-dessous de 13 °K, l'atténuation est pratiquement constante.

Axe (1,0,0)

Les résultats sont représentés sur la figure 4 pour la polarisation longitudinale à 500 et 980 MHz. Les remarques qui ont été faites pour la propagation suivant l'axe (0,0,1) sont également valables suivant cette direction. Toutefois, l'amplitude de la variation d'atténuation est moindre puisque à 1 GHz et pour $T < T_N$, $\Delta\alpha\ (0,0,1) \sim 1,5\ \Delta\alpha(1,0,0)$.

Axe (1,1,0)

Les courbes sont représentées sur la figure 5, en ce qui concerne le cristal N° 5, et sur la courbe N°1 de la publication[13] en ce qui concerne le cristal N°6. Les observations faites à propos des deux autres axes de propagation sont également valables.

3.2 - Vitesse de phase

Les mesures ont été faites uniquement pour des propagations avec $\vec{q}$ //(0,0,1)

3.2.1 - Polarisation transversale

Les expériences ont été faites à 0,2 et 0,5 GHz sur le cristal N°2. Aucune variation critique n'a été mise en évidence.

3.2.2 - Polarisation longitudinale

Les courbes ont été tracées pour le cristal N°1 aux fréquences 0,1, 0,2, 0,5, 0,72 GHz et sont représentées pour T variant de 13°K à 273°K sur la figure 6. Elles admettent toutes la même asymptote pout $T > T_N$ entre 100°K et 273°K.

La figure 7 donne les variations de $\Delta V/V_o$ en-dessous de 100°K. On peut voir sur cette courbe que, pour $T < T_N$, un maximum de $\Delta V/V_o$ existe à 0,1 GHz et 0,2 GHz, à 0,2 GHz son amplitude commence à diminuer. Il disparaît complètement à 0,72 GHz.

La figure 8 représente les fréquences 90-110 MHz de T.J. MORAN et B. LÜTHI[14] et les fréquences 100,200, 500, 720 MHz de la présente publication. Les résultats reportés ici pour 100 MHz sont situés légèrement en-dessous de ceux de la publication[14] pour 110 MHz. On peut donc considérer que malgré la différence des cristaux, des systèmes de mesure et des expérimentateurs, l'accord est excellent.

A. T_N, le phénomène qui provoque le minimum de $\Delta V/V_o$ à 110 MHz pour $T < T_N$ entre en compétition avec la variation pour $T > T_N$ et l'on obtient un maximum relatif isolé de la variation de vitesse de phase. La figure 9 représente la variation de $\Delta V/V_o$ près de T_N. Elle constitue l'un des moyens permettant de déterminer T_N.

3.3 - Détermination des asymptotes et de la température critique.

Pour interpréter les résultats ci-dessus, il est nécessaire de déterminer, d'une part la température de transition, d'autre part l'asymptote de l'atténuation. La variation de $\Delta V/V_o$ n'a plus rien de critique en effet pour $T >> T_N$, car elle provient uniquement de la contribution du réseau à la constante élastique ; c'est par rapport à cette dernière variation que s'apprécie la contribution des fluctuations magnétiques.

3.3.1 - Détermination de T_N

Deux moyens ont été utilisés pour déterminer T_N :

- La partie verticale de la variation d'atténuation juste avant le maximum d'atténuation à 0,1 GHz donne une première valeur. On trouve par cette méthode 67,4 ± 0,1°K. L'indétermination provient de l'arrondi du maximum qui peut en plus être déplacé par le phénomène observé au-delà de 200 MHz.

- La variation de vitesse de phase à 0,1 GHz présente, comme nous l'avons vu dans les résultats expérimentaux, un maximum relatif isolé à la séparation des deux régimes $T > T_N$ et $T < T_N$. Ce maximum est visible sur la figure 9. La température de ce maximum a été choisie comme valeur de T_N. On trouve $T_N = 67.37 \pm 0,01$ °K. Cette valeur est très proche de celle déterminée par C. PARETTE et K. USHADENIZ [12] dans un cristal de même provenance.

3.3.2 - Asymptote de l'atténuation ($T > T_N$)

On peut faire un choix "naïf" qui consiste à remarquer qu'à haute température la variation de α est linéaire en fonction de T.

Si l'on admet le choix de cette asymptote, un certain nombre de remarques s'impose :

- Une variation notable d'atténuation est perçue dès 130°K suivant l'axe (0,0,1), 110°k suivant (1,0,0) et 95°K suivant (1,1,0). Cette différence traduit seulement les différences d'amplitude du phénomène d'atténuation suivant les axes.

- La variation d'atténuation à T_N est pratiquement indépendante de la provenance du cristal. Ceci peut se voir sur la figure 2 de la présente publication, en ce qui concerne la propagation suivant l'axe (0,0,1) et en comparant la figure 5 de la présente publication à la figure 1 de la publication [13] pour l'axe (1,1,0).

- L'amplitude de la variation de l'atténuation à T_N dépend de la direction de propagation des ultrasons

$\Delta\alpha$ (0,0,1) [illegible] $\Delta\alpha$ (1,[illegible],0)

$\Delta\alpha$ (0,0,1) $\sim$ 3,5 $\Delta\alpha$ (1,1,0)

$\Delta\alpha$ (1,0,0) $\sim$ 2,3 $\Delta\alpha$ (1,1,0)

Ces chiffres complètent la première remarque.

3.4 - Application d'un champ magnétique.

L'influence d'un champ magnétique de 30 KG appliqué parallèlement à l'axe (0,0,1) du cristal N°1 sur l'atténuation et la vitesse de phase d'ultrasons de polarisation longitudinale se propageant parallèlement à l'axe (0,0,1) a été étudiée. Les résultats sont reproduits sur les figures 10 pour l'atténuation et 11 pour la vitesse de phase. Le champ magnétique est presque sans effet sur l'atténuation sauf pour des températures inférieures à 60°K où elle est légèrement plus faible que dans le cas sans champ magnétique.

En ce qui concerne $\Delta V/V_o$ l'application du champ entraîne une légère diminution pour $T > T_N$ et une augmentation du même ordre pour $T < T_N$, ceci se produit sur 20°K de part et d'autre de T_N.

L'effet du champ magnétique a donc une influence pratiquement négligeable sur les résultats expérimentaux.

4 - Interprétation des résultats.

4.1 - Largeur de la transition.

Elle est définie ici comme la largeur à mi-hauteur de la courbe constituée de la variation d'atténuation pour $T > T_N$ et de sa partie symétrique pour $T < T_N$. Elle est de l'ordre de 30°K à 1 GHz pour des ultrasons de polarisation longitudinale se propageant suivant l'axe C. Elle peut être comparée à celle de Cr_2O_3 [15] qui est égale à 0,2°K à la même fréquence ; elle est donc beaucoup plus large. Cette différence traduit le fait que dans MnF_2 les interactions entre ions magnétiques sont à faible portée (deux premiers voisins) alors que, dans Cr_2O_3, on a pu mesurer des intégrales d'échange jusqu'au douzième voisin.

4.2 - Atténuation pour $T > T_N$

4.2.1 - Polarisation transversale.

Les résultats du paragraphe précédent montrent qu'avec

cette polarisation, il n'y a aucune variation d'atténuation. Ceci prouve que le couplage par processus de Van Vleck est négligeable. En effet, pour ces ondes, la variation de la distance mutuelle des ions est du second ordre et en tout état de cause la modulation de l'intégrale d'échange reste extrêmement faible : le mécanisme de Waller est dans ce cas inefficace. Mais, puisque à cette occasion, aucun effet critique n'est décelable, c'est donc aussi que le mécanisme de Van Vleck est peu efficace. Si l'on admet que le tenseur des constantes de couplage spin-phonon a des composantes du même ordre de grandeur, on en tire la conclusion que, même pour les ondes longitudinales, le mécanisme de Van Vleck jouera un faible rôle. Cette remarque sera exploitée ultérieurement pour simplifier l'interprétation.

4.2.2 - Polarisation longitudinale.

1°) Il existe une variation linéaire de $\log\alpha$ en fonction de $\log\varepsilon$ pour ε variant de 10^{-4} à 10^{-2} c'est-à-dire que $\alpha \simeq \varepsilon^{-y}$

2°) L'exposant y est très faible et pratiquement égal à zéro. $y_{(0,0,1)} = 0,078$; $y_{(1,0,0)} = 0,023$; $y_{(1,1,0)} = 0,014$.

3°) Enfin comme on peut le voir sur les figures 1, 2, 3,4, 5 et 12, 13, 14, la variation d'atténuation et l'exposant y sont indépendants de la fréquence des ultrasons.

Pour essayer d'interpréter ces résultats, il est utile de rappeler ce qui a été établi dans les expériences qui ont eu lieu à plus basse fréquence.

Pour $T_N + 0,02°K < T < T_N + 1,2°K$, il existe un temps de relaxation spin-phonon τ_L [3] . Il mesure le retour à l'équilibre de la densité d'énergie des spins et $\tau_L = 310^{-9}$ sec. Aux plus hautes fréquences, nous sommes donc dans le cas $\omega\tau_1 >> 1$ et, d'après la présentation théorique esquissée plus haut, l'atténuation ne devrait pas dépendre de la fréquence ni de la température ($\alpha \sim \varepsilon^0$) ; c'est pratiquement ce qui est

observé ici pour T tel que $T_N + 0{,}02°K < T < T_N + 1{,}2°K$. Cette partie de la courbe d'atténuation peut donc s'interpréter de façon satisfaisante comme dans le cas haute fréquence du couplage des ultrasons avec les fluctuations de la densité d'énergie

4.3 - Atténuation pour $T < T_N$. Couplage Landau-Khalatnikov.

L'interprétation sera centrée sur l'explication du maximum d'atténuation qui apparaît à partir de 200 MHz pour $T < T_N$ et dont on a vu qu'il se déplace vers les basses températures au fur et à mesure que la fréquence augmente.

On commencera d'abord par éliminer les explications de ce phénomène liées à des effets parasites du point de vue des changements de phase ; puis on montrera que cette atténuation peut s'interpréter simplement en terme de couplage entre les déformations élastiques et le paramètre d'ordre $(S_z^1 - S_z^2)$. On verra qu'on n'aura besoin d'ajuster aucun paramètre numérique pour expliquer le comportement de ce phénomène et que les résultats de la diffusion critique des neutrons trouvent ici un emploi immédiat.

4.3.1 - Elimination d'effets parasites

Influence possible des domaines.

L'existence de domaines dans un cristal antiferromagnétique a été démontrée à la fois en utilisant des expériences optiques et de diffusion de neutrons [16]. L'origine de ces domaines est liée en général aux imperfections du cristal telles que les joints de grains ou les dislocations. Elle ne peut se justifier, comme dans le cas ferromagnétique, par des considérations sur la minimisation de la seule énergie magnétique. [17]

Il existe assez peu d'expériences mettant en évidence les domaines dans des cristaux du type de MnF_2 [18]. En fait leur dimension est inconnue. Par contre, l'épaisseur des parois et la densité d'énergie qu'elles contiennent ont été déterminées [19].

Il est a priori possible que ces domaines soient couplés aux ultrasons et deviennent une cause d'atténuation. Mais, on sait que l'application d'un champ magnétique change à la fois leurs dimensions et leur répartition dans le cristal [18], ce qui devrait modifier une éventuelle atténuation. Or, on a vérifié expérimentalement (Figs.10-11) que l'effet d'un champ magnétique de 30 KG était négligeable.

De plus, si les domaines antiferromagnétiques sont principalement induits par les défauts cristallins, il est peu probable que des cristaux de quatre origines différentes aient la même répartition de défauts. Il est donc licite de négliger leur influence.

4.3.2 - Couplages avec les modes d'onde de spin.

Pour $T < T_N$, on peut songer à une interaction résonnante entre les ondes sonores et les ondes de spin ; toutefois, la dépendance de la fréquence des ondes de spin en fonction de la température [ ] exclut cette explication ; elle croît en effet très vite en-dessous de T_N et dépasse la valeur de 90 GHz pour $\varepsilon \simeq 5.10^{-2}$. Le maximum d'atténuation, tel qu'il est enregistré, ne peut avoir cette origine. On ne peut pas davantage l'expliquer par un couplage non résonnant [21].

4.3.3 -Résonance nucléaire acoustique.

Cet effet provoque une grande absorption (40 dB/cm) des ondes ultrasonores dans $RbMnF_3$ [22]. Mais, cette absorption n'a lieu que pour des fréquences qui sont voisines de celles de la résonance des spins nucléaires ; or, on sait qu'elle est limitée supérieurement à $\omega_N = 680$ MHz et qu'elle décroît quand on se rapproche de T_N suivant une loi : $\omega_N(\varepsilon) = \omega_N \varepsilon^{1/3}$. Comme le phénomène examiné ici a encore lieu pour des fréquences très supérieures à 680 MHz, cette éventualité est à éliminer.

4.3.4 - Divers autres effets possibles

Il est de même aisé de se rendre compte que cet effet ne peut venir de l'influence d'impuretés sur la résonance nucléaire[23], ni des magnons localisés[24], ni du dédoublement du niveau fondamental d'ions dopants[25].

4.3.5 - Couplage avec les fluctuations du système de spin.

Pour $T < T_N$ l'atténuation ultrasonore peut avoir deux origines :

- un couplage avec les fluctuations du paramètre d'ordre d'une façon semblable à ce qui se produit pour $T > T_N$; l'atténuation correspondante doit décroître pour des températures qui s'écartent de T_N.

- une relaxation du paramètre d'ordre M vers une valeur d'équilibre déterminée par les paramètres internes du corps (température, pression) avec un temps microscopique τ ; l'onde acoustique a modifié léquilibre local et en particulier M va relaxer vers une nouvelle valeur. Lorsque $T \to T_N$, τ augmente et il existe une température pour laquelle $\omega\tau = 1$, pour laquelle l'atténuation passe par un maximum. Ce phénomène, généralement appelé processus de Landau-Khalatnikov , n'intervient que pour $T < T_N$, car M est alors $\neq 0$ et c'est à son explication complète qu'est réservé le paragraphe suivant.

PUBLICATION PARUE

AU "PHYSICAL REVIEW LETTERS" 30, 617 (1973

PHYSICAL REVIEW LETTERS 30, 617 (1973)

ATTENUATION OF HIGH FREQUENCY ACOUSTIC WAVES IN THE LOW TEMPERATURE SIDE OF THE MnF_2 NEEL POINT

A. BACHELLERIE, J. JOFFRIN et A. LEVELUT

Laboratoire d'Ultrasons*, Université Paris VI
Tour 13, 11 quai Saint-Bernard, 75230 Paris Cedex 5

Acoustic attenuation experiments at frequencies up to 1000 MHz in the vicinity of the Néel point of MnF_2 are presented. They show that the attenuation is maximum in the low temperature phase near the transition and the temperature at which that maximum appears decreases as the frequency increases. A brief scanning of the theory is given which explains this new effect in term of relaxation of staggered magnetization.

*Associated with the Centre National de la Recherche Scientifique

One of us has recently presented [1] preliminary experiments showing a completely asymmetric behaviour of the attenuation of ultrasonic waves around the Néel point of the antiferromagnetic crystal MnF_2.

In the low temperature phase, the attenuation has a maximum which shifts to lower temperature when the frequency is increased from 100 MHz to 1000 MHz. The temperature shift is as large as 10°K at the highest frequency. In this letter we would like to summarize new experimental results and present an explanation of that phenomena in terms of the relaxation of the order parameter, namely a Landau-Khalatnikov effect. That one has very often been invoked to explain anomalous behaviour of the acoustic attenuation around a critical temperature [2] ; but the only circumstances where it has been firmly proved is the case of the λ transition of Helium [3]. We hope to prove here its effectiveness in the case of the antiferromagnetic transition of MnF_2.

Theoretical arguments supporting that idea may be given along the following lines. A longitudinaly polarized acoustic wave modulates the distance between magnetic ions coupled by exchange forces leading to a Hamiltonian of the form

$$\mathcal{H}_{coupling} = \sum_{q'} G(qq')\ \epsilon(-q)\ S_z^{(1)}(q')\ S_z^{(2)}(q-q')$$

where $G(qq')$ is proportional to a derivative of the exchange constant J versus the distance between the ions, $\epsilon(q)$ is the strain associated with the acoustic wave, $S_z^{(1)}$ and $S_z^{(2)}$ are the Fourier components of the magnetization of each sublattice. $\mathcal{H}_{coupling}$, of course, must include terms involving transverse components of spin operators ; but those ones do not enter into the discussion which is concerned only with the fluctuations of the order parameter. There is a standard result to note that the attenuation per unit-length of the ultrasonic wave [4] may be expressed as

$$\sigma_1 \simeq \omega |G|^2 \chi''_{S_z^{(1)} S_z^{(2)}}(\omega, q)$$

where χ'' is the correlation function of the operator $\left\{ S_z^{(1)} S_z^{(2)} \right\}$ at the frequency ω and wave vector q of the ultrasonic wave.

That term has to be calculated in the two phases ; the simplest calculation uses a decoupling procedure [5] ; in any case it gives an attenuation peaked at T_N, more or less symmetric around that temperature and which has been reported in MnF_2 by several investigators [6].

However, in the low temperature phase, there is an additional contribution σ_2 to the attenuation coming from the fact that

$$\langle S_z^{(1)} \rangle = - \langle S_z^{(2)} \rangle = S(T)$$

$S(T)$ is the order parameter of the antiferromagnet and has a temperature dependence (for $T < T_N$) ε^{β} where $\varepsilon = \frac{T_N - T}{T_N}$. σ_2 is simply deduced from σ_1 by a decoupling procedure, which is not an approximation, as

$$\begin{cases} \sigma_2 \simeq \omega |G|^2 \, S^2(T) \, \chi''_{\mathcal{N}_z}(\omega, q) & T < T_N \\ \sigma_2 \simeq 0 & T > T_N \end{cases} \qquad (1)$$

where $\chi''_{\mathcal{N}_z}(\omega, q)$ is now the correlation function of the staggered magnetization $\mathcal{N}_z = S_z^{(1)} - S_z^{(2)}$. $\chi''_{\mathcal{N}_z}$ is known from neutron diffraction experiments [7] and is given by

$$\chi''_{\mathcal{N}_z}(q, \omega) = \frac{A_-(T,q)}{q^2 + K_{//}^2(T)} \; \frac{\omega \, \Gamma_{//}(T)}{\omega^2 + \Gamma_{//}^2(T)} \qquad (2)$$

where $K_{//}(T) = K_- \varepsilon^{\nu'}$ is the inverse of the correlation length, $A_-(T,q)$ is almost constant in the temperature range considered here.

$$\Gamma_{//}(T) = K_{//}^{3/2}(T) \, \Omega_-(q/K_{//}) \qquad (3)$$

is the characteristic frequency of the magnetization ; $\Omega_-(q/K_{//})$ is a scaling function which is also known numerically, at least for q not too small :

$$\Omega\ (q/K_{/\!/}) = A + B\,\frac{q}{K^2} \qquad (4)$$

where A and B are experimentally estimated [7].

[illegible] for [illegible], [illegible] that [illegible] ;

in reduced quantities, we may thus finally write

$$\sigma_1(\tau) \propto \frac{\tau^{2\beta-\nu'/2}}{\tau_c + \tau^{3\nu'}}\,\omega^2 \qquad (5)$$

where, in the former quantities

$$\tau = \frac{\omega}{\Omega} = \frac{\omega}{A\,K^{1/2}} \qquad (6)$$

In the two last references quoted in [6], σ_1 is clearly resolved at low frequency, and σ_2 begins to appear at intermediate frequency.

In order to test the formula (5), we propagate longitudinally, and transversally polarized acoustic waves along the axes (100), (110), (001) at frequencies ranging from 100 MHz to 1000 MHz. The MnF_2 crystal [8] was carefully oriented, polished and bonded with 4-methyl-1-pentene on a buffer of corundum. Unto the other end of the buffer a ZnO transducer was evaporated and acted as the generator and detector of acoustic waves. The temperature of the sample was carefully controlled and varied by steps. Typical attenuation curves are given in the figure 1 for several frequencies. The essential features are : the total attenuation $\sigma = \sigma_1 + \sigma_2$ in the low temperature phase shows a maximum for all the directions of propagation

when longitudinal waves are used, but that does not occur for any direction with transversally polarized waves ; the amplitude of the attenuation peak depends on the q vector direction but the shift in temperature does not ; a plot of the temperature T_M for the maximum of the attenuation at different frequencies is given in the figure 2 and is compared with the theoretical result deduced from (5) : $\varepsilon_{max} \simeq \varepsilon_0^{2/3\nu'}$; the following numerical values [7] are used : $\beta = 1/3$, $\nu' = 0.56$, $K_- = 10^8$ c.g.s., $A = 3 \cdot 10^{-2}$ c.g.s.

On the same graph, the second curve gives the values of the attenuation maximum as a function of frequency ; the theoretical expression deduced from (5) is $\sigma_{2\,max} \sim \varepsilon_0^{(2\beta-\nu'/2)2/3\nu'}$. An analysis of the experimental curve $\sigma_2(T)$ shows that on the low temperature side of T_M, there is some discrepancy from the theoretical expression ; it corresponds to the fact that around $T \simeq 50°K$ the attenuation from the bath of the thermal phonons also decreases. Comparing high ($T \gg T_N$) and low ($T \simeq 4°K$) temperature attenuations, its amplitude may be appreciated ; for each frequency the corrected points thus obtained are in closer agreement with the formula (5).

The attenuation by thermal phonons also shifts the observed maximum closer to T_N and is probably responsable of the small curvature of the curve $\Delta T(\nu)$ on fig. 2 at high frequency ; for instance, at 1000 MHz the attenuation by the thermal phonons, estimated with the former procedure, is 27 dB/cm ; it is to be compared with σ_2 (max) which is 57 dB/cm

In that sense a study of a crystal with its Néel point far from the temperature range where the attenuation due to the phonon bath decreases, would probably leads to a better agreement.

Finally we have noted that the curves of attenuation are quite independent of any applied magnetic field up to 30 kG ; that rules out the coupling of the acoustic waves with domaihs which, we know, are suppressed with a few kilogauss [9], with nuclear spins [10] whose frequency is limited in MnF_2 at 640 MHz, and with electronic spin waves [11] whose frequency is, anyhow, much larger than the frequency of the acoustic waves used in these experiments.

The good agreement obtained between the theory and the experiment thus seems to show that the Landau-Khalatnikov is very effective. We would like to add some other comments.

a) It is satisfying to see that this new type of attenuation always occurs with longitudinally polarized waves ; because the main exchange interaction between the two sublattices takes place by pairs of Mn^{2+} ions whose axis make an angle with any simple directions of the crystal in which we have propagated acoustic waves, the distance of the ions is always modulated. On the other hand, that does not occur with transverse waves.

b) The fitting of the curves has been realized without adjusting any parameter. The only liberty used is a numerical value for A entering $\Gamma_{//}$ which has been chosen inside the errors of neutron diffraction results [7]. As a consequence, in the limit of small wave vector, the relaxation time of the staggered magnetization is expressed as $T_{//}(q\to 0) = 3\cdot 10^{-11}(\varepsilon)^{-2/3\nu}$,

c) The behaviour of $\Gamma_{//}$ revealed by those experiments must be emphasized. Scaling laws propose no explicit function for $\Omega_-(q/K_{//})$. So that Shulhof and al [7] have analysed their results successively with :

$$\Omega_- = A + B(q/K_{//})^2$$

and $\Omega_- = B'(q/K_{//})^2$

In fact the values of the q vector spanned by neutron diffraction experiments is always such as $B(q/K_{//})^2 \gg A$ and it is thus difficult to reach a good numerical value for A. On the contrary, in acoustic experiments, the wave vector q is so small that $B(q/K_{//})^2 \ll A$. Heller [12] has already proposed an explanation for the two contributions to Ω_- : the first part (A) must be related with the adiabatic longitudinal relaxation ; the second part $\left(B(q/K_{//})^2\right)$ must be related with the isothermal longitudinal relaxation : its characteristic time $1/\Gamma_{//}$ behaves as $1/q^2$ because in the low temperature phase

the magnetization is coupled with the density of energy which, itself, easily relaxes over small distances (large q) and follows a diffusion law. Following that interpretation, the relaxation time measured in our experiments corresponds to adiabatic fluctuations of the order parameter. It is a common feature in ultrasonic experiments.

In conclusion, the results presented here appear to be complementary of those obtained from neutron diffraction data ; they show that the Landau-Khalatnikov effect may also operate in solids.

REFERENCES

[1] A. BACHELLERIE, Sol. St. Com. 8, 1059 (1970)

[2] A. LAUBERAU, R. ZUREK, Zeischrift für Naturf. 25a, 391 (1970)

A.P. LEVANYUK, Sov. Phys. JETP 22, 901 (1966)

T.J. MORAN, B. LUTHI, Phys. Rev. B 4, 122 (1971)

[3] I.M. KHALATNIKOV, Sov. Phys. JETP, 30, 268 (1970)

R.D. WILLIAMS, I. RUDNICK, Phys. Rev. Lett. 25, 276 (1970)

[4] P. KWOK, Sol. St. Phys. 20, 204 (1967)

[5] E. PYTTE, H. BENNETT, Phys. Rev. 164, 712 (1967)

[6] J.R. NEIGHBOURS, R.W. OLIVER, C.H. STILLWELL, Phys. Rev. Lett.
[11, 125 (1963)

J.R. NEIGHBOURS, W. MOSS, Phys. Rev. 173, 542 (1968)

R.G. EVANS, Phys. Letters 27A, 451 (1968)

A. IKUSHIMA, Phys. Letters 29A, 364 (1969)

A. IKUSHIMA, . Phys. Chem. Solids 31, 283 (1970)

T.J. MORAN, B. LUTHI, Phys. Rev. B4, 122 (1971)

Y. SHAPIRA, Sol. St. Comm. 9, 809 (1971)

[7] M.P. SHULHOF, Report B.N.L. 14712, Physics Department,
[Brandeis University, Waltham, Mass.02154

M.P. SHULHOF, P. HELLER, A. LINZ, R. NATHANS
[Phys. Rev. B4, 2251 (1970)

[8] The different samples were supplied by S. LEGRAND in C.E.A., Saclay, France , C.D.W. WILKINSON and NUCLEAR METALS

[9] H.A. H'ALPERIN, P.J. BROWN, R. NATHANS and S.J. RICKART [Phys. Rev. Lett. 8, 237 (1962)

[10] K. WALTHER, Sol. St. Comm. 5, 399 (1967)

[11] T. JIMBO, C. ELBAUM, Phys. Rev. Lett. 28, 1393 (1972) P. DOUSSINEAU, B. FERRY, J. JOFFRIN, A. LEVELUT, [Phys. Rev. Lett. 28, 1304 (1972)

[12] P. HELLER, Intern. J. of Magnetism 1, 53 (1970)

FIGURE 1

Experimental curves giving the total attenuation $\sigma_1 + \sigma_2$, in the low temperature phase at several frequencies. The direction of propagation is (0.0.1).

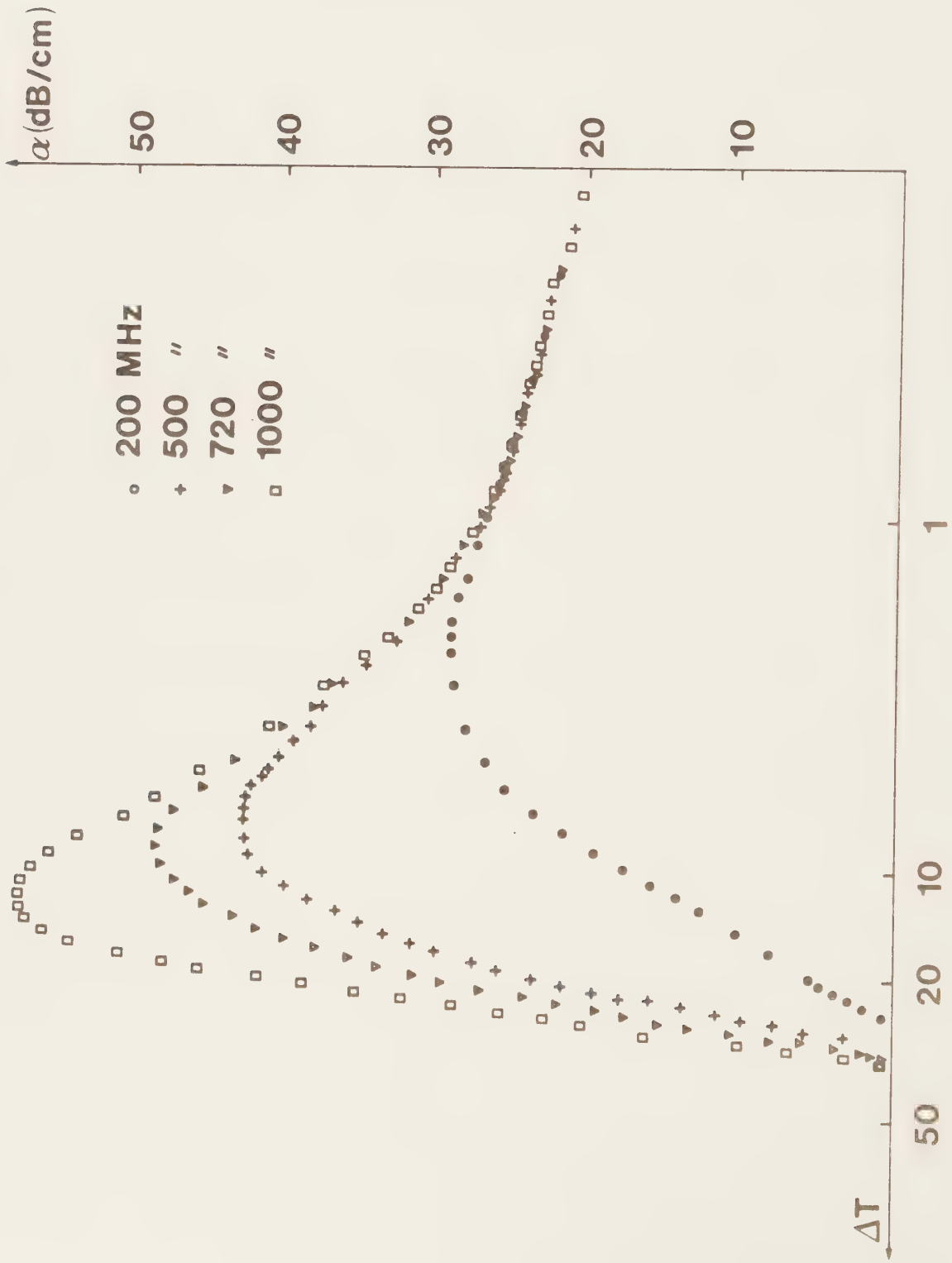
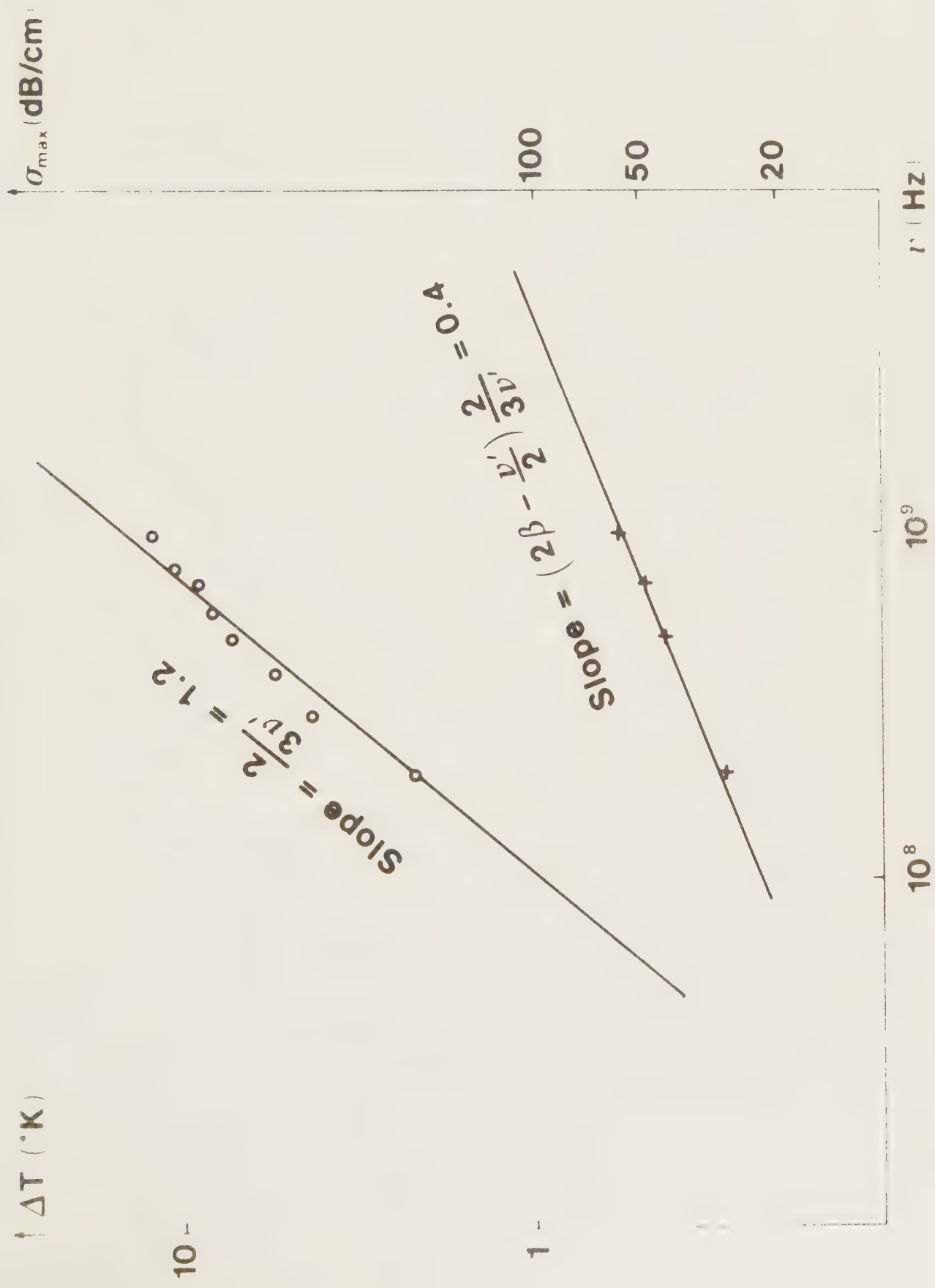


FIGURE 2

The experimental points o giving the shift in the maximum of amplitude are plotted as a function of the wave frequency , a straigrt line of slope 2/3v' is drawn for comparison .

The experimental crosses x give the maximum of the attenuation σ_2 for different frequencies and for longitudinal waves propagating along (C.C.1) axis.



Cette étude a montré que la variation d'atténuation à la transition est essentiellement due à la magnétostriction en volume. Ceci n'est pas surprenant ; cette interaction est en général dominante pour les transitions magnétiques du second ordre.

La "largeur" de la transition vue aux ultrasons (30°K à 1 GHz) est compatible avec les résultats des neutrons qui ont montré que seules les intégrales d'échange J_1 et J_2 ne sont pas négligeables.

Pour $T > T_N$, le régime haute fréquence a été atteint en ce qui concerne l'atténuation due aux fluctuations de la densité d'énergie ($\omega\tau_L \sim 54$ à 1 GHz). Dans la gamme de températures où τ_L a été mesuré à plus basse fréquence ($T_N + 0{,}02°K < T < T_N + 1{,}2°K$), on observe l'effet prévu par la théorie , c'est-à-dire une variation d'atténuation pratiquement indépendante de la fréquence et de la température.

La variation de $\frac{\Delta V}{V_o}$ pour $T > T_N$ confirme elle aussi que le régime haute fréquence est atteint; dès 0,1 GHz la variation de $\frac{\Delta V}{V_o}$ est faible et elle disparaît complètement à 0,7 GHz.

Ces résultats sont donc compatibles avec ceux obtenus par d'autres auteurs à plus basse fréquence sur l'existence d'un temps de relaxation des fluctuations d'énergie. Il serait très intéressant de connaître l'influence de la diffusion, car le temps de relaxation τ_D est parfois plus grand que τ_L , c'est le cas de EuO [26] . Dans MnF_2 les résultats des neutrons [6] ne permettent pas de mettre en évidence la diffusion pour $T > T_N$ Il est possible d'évaluer τ_D connaissant la conductibilité thermique du système de spin [27] (mais cette détermination est soumise à beaucoup d'arbitraire car elle ne présente pas de variation vraiment critique permettant une évaluation avec le minimum de précision) et la variation de la capacité

calorifique de spin [28]. Une solution plus instructive consisterait à faire une expérience d'absorption ultrasonore vers 1 MHz, si elle ne permettait pas de déterminer τ_D, elle en fixerait une borne supérieure ou inférieure.

Une autre question soulevée par ces expériences est de savoir si la théorie d' absorption des ultrasons à haute fréquence [1] est vérifiée dans MnF_2 et d'essayer de déterminer si elle peut l'être. L'étude faite dans cette publication a montré que la réponse à cette première question était négative.

La réponse à la seconde se trouve encore une fois dans les résultats des neutrons. En effet, à 70°K, le temps de fluctuation du paramètre d'ordre τ_F [6] est de 4.10^{-11}s, d'où la tentation de monter en fréquence pour observer son couplage avec les ultrasons ($\omega\tau_F \simeq 1$).

L'influence de la relaxation des fluctuations d'énergie serait négligeable puisqu'elle l'est déjà à 1 GHz. Toutefois, cette expérience apparaît problèmatique étant données les atténuations très élevées à ces fréquences, même à la température ambiante.

Si l'on voulait de plus voir le changement de l'indice critique dû à l'existence de l'anisotropie, [29] qui dans MnF_2 et pour $T > T_N + 2°K$ est voisin de 1, tandis que pour $T_N < T < T_N + 2°K$ il est voisin de 1,3, il faudrait se placer dans le cas haute fréquence ($\omega\tau_F >> 1$), ce qui est irréalisable dans ce corps à ces températures.

Pour $T < T_N$, il a été montré que le maximum d'atténuation observé ne pouvait avoir son origine dans un certain nombre d'effets qui ont souvent une influence dans les composés magnétiques.

Si ces différents effets sont, dans l'état actuel des connaissances, tous à éliminer, il n'en est pas de même du processus de Landau-Khalatnikov sur la relaxation adiabatique du paramètre d'ordre.

Il permet d'interpréter la variation d'amplitude et le déplacement du maximum d'atténuation en fonction de la température ; de plus, il est compatible avec le fait que les ondes transversales ne sont pas atténuées ; enfin, il permet d'évaluer avec une bonne précision le temps de relaxation adiabatique du paramètre d'ordre.

Ces résultats montrent de façon tangible que les expériences ultrasonores et la diffusion des neutrons sont complémentaires. Les premières, en effet, permettent d'atteindre une bien meilleure précision pour les petits vecteurs d'onde, mais elle ne peuvent actuellement explorer le domaine des grands vecteurs d'onde ; c'est l'inverse qui se produit pour la diffraction des neutrons.

Comme pour $T > T_N$ la complémentarité des deux méthodes peut encore s'illustrer pour $T < T_N$ lors de l'évaluation du coefficient de diffusion dans MnF_2. Etant donnée la précision des neutrons, les résultats expérimentaux [6] permettent d'établir que τ_D est compris entre 0 et $3,6\ 10^{-8}$ s. Comme les expériences ultrasonores faites à plus basse fréquence n'ont pas mis en évidence de phénomène de diffusion et qu'elles ont été faites à des fréquences aussi basses que 8 MHz [30], on sait donc que la diffusion interviendrait pour des fréquences égales ou inférieures au MHz et c'est pour des pulsations égales ou inférieures à cette valeur, dans cette gamme de température, que devraient être faites les expériences ultrasonores.

Si ces résultats ont montré le caractère complémentaire des expériences ultrasonores et des expériences de diffraction neutronique, elles ont aussi montré l'existence de l'effet Landau-Khalatnikov sur la relaxation adiabatique du paramètre d'ordre dans les solides.

BIBLIOGRAPHIE

(1) K. KAWASAKI, Phys.Rev. A3, 1097 (1971).
G.E. LARAMORE, L.P. KADANOFF, Phys.Rev. 187, 619 (1969).

(2) B. LÜTHI, T.J. MORAN, R.J. POLLINA, J.Phys.Chem.Solids, 31, 1741 (1970).

(3) K. KAWASAKI, A. IKUSHIMA, Phys.Rev. B1, 3143 (1970).
T.J. MORAN, B. LÜTHI, Phys.Rev. B4, 122 (1971).

(4) K. WALTHER, Sol.State Commun. 5, 399 (1967).

(5) TAKEHITO JIMBO, C. ELBAUM, Phys.Rev.Lett. 28, 1393 (1972).

(6) M.P.SCHULHOF, R. NATHANS,P. HELLER, A. LINZ, Phys.Rev. B4, 2254 (1971).

(7) L.P. KADANOFF, P.C. MARTIN, Annals of Physics, 24, 410, (1963).

(8) H.B.G. CASIMIR, F.K. DUPRE, Physica 5, 507 (1938).

(9) T.B. BATEMAN, Jnl. Acoustical Soc.America, 41, 1019,(1967).

(10) J.C. BACRI, Thèse de Troisième Cycle, Paris (1969).

(11) Echelle Internationale Pratique de Températures de 1968. Metrologica, 5 N°2 (1968).

(12) G. PARETTE, USHA DEMIZ K. J.Appl.Phys. 39 , 1232 (1968).

(13) A. BACHELLERIE, Solid State Commun. 8, 1059 (1970).

(14) Ces courbes ont été tracées d'après le preprint envoyé par T.J. MORAN et B. LÜTHI, et qui est à une plus grande échelle que celle de la publication définitive parue dans : T.J. MORAN, B. LÜTHI, Phys.Rev. B4, 122 (1971).

(15) A. BACHELLERIE, Ch. FRENOIS , A paraître.

(16) W. ROTH, J. Appl.Phys. 31, 2000 (1960).
P.S. PERSHAN , Phys.Rev.Lett. 7, 280 (1961).

(17) A.H. MORRISH, The physical principles of magnetism
J. Wiley ans Sons, Inc. New-York. p.481.

(18) H.A. HALPERIN , P.J. BROWN , R. NATHANS, S.J. PICKART
Phys.Rev.Lett. 8, 237 (1962).

(19) M.M. FARZTDIMOV, Fiz.Metal.Metalloved. 19, 321 (1965).

(20) F.M. JOHNSON , A.H. NETHERCOT , Phys.Rev. 114, 705, (1959
Fig.7 p.712 $\varepsilon = \frac{3,5}{67} = 5,210^{-2}$ f > 90 GHZ

(21) A. BACHELLERIE, J. JOFFRIN, A. LEVELUT, J. Physique, 32,
995 (1971).

(22) J.B. MERRY, D.I. BOLEF, Phys.Rev.Lett. 23, 126 (1969).

(23) M. BUTLER, V. JACCARINO, N. KAPLAN, H.J. GUGGENHEIM,
Phys.Rev.1B, 3058, (1970).

(24) T.M. HOLDEN, R.A. COWLEY, W.J. L.BUYERS, R.W. H. STEVENSON,
Solid State Commun. 6, 146 (1968).
A.J. SIEVERS, R.W. ALEXANDER Jr., S. TAKENO, Solid State
Commun. 4, 483 (1966).

(25) L.F. JOHNSON, R.E. DIETZ, H.J. GUGGENHEIM, 17, 13 (1966).

(26) B. GOLDING, M. BARMATZ, E. BUEHLER, M.B. SALAMON, Phys.Rev.
Lett. 30 , 968, (1973).

(27) G.A. SLACK, Phys.Rev. 122, 1451,(1961).

(28) D.T. TEANEY, Phys.Rev.Lett. 14, 896, (1965).

(29) E. RIEDEL, F. WEGNER, Phys.Rev.Lett. 24, 730 (1970).
Phys.Lett. 32A, 370 (1970).
T. KAWASAKI, Progress.Theoret.Phys. (Kyoto) 41, 1381 (1969).

(30) J.R. NEIGHBOURS, R.W. MOSS, Phys.Rev. 173, 542 (1968).

LEGENDES DES FIGURES

FIG.1 - Variation d'atténuation des ultrasons de polarisation longitudinale de fréquences 100, 200, 500 MHz se propageant suivant l'axe C du cristal N°1. On peut observer sur cette figure l'apparition du maximum d'atténuation à 200 MHz, son déplacement vers les basses températures, l'augmentation de son amplitude quand ω croît. (T_N est approximativement repéré par la partie verticale de la courbe à 0,1 GHz).

FIG.2 - Variation d'atténuation des ultrasons de polarisation longitudinale et transversale de fréquence 720 MHz se propageant suivant l'axe C des cristaux N° 1 et N° 2. Sur cette courbe, on peut constater que deux cristaux de provenances différentes donnent une même courbe d'atténuation en fonction de la température (seule une petite différence peut être constatée vers 15°K).

FIG.3 - Variation d'atténuation des ultrasons de polarisation longitudinale de fréquence 1 GHz se propageant suivant l'axe (0,0,1) du cristal N° 1. La courbe à 500 MHz représente la variation d'atténuation d'une onde de polarisation transversale se propageant suivant l'axe C du cristal N° 3.

FIG.4 - Atténuation en dB/cm d'une onde ultrasonore de polarisation transversale et longitudinale se propageant suivant l'axe (1,0,0) du cristal N° 4 .
Comme pour l'axe (0,0,1), le maximum se déplace vers les basses températures quand la fréquence croît, mais l'amplitude du maximum est plus faible $\Delta\alpha_M(0,0,1) \sim 1,4\ \Delta\alpha_M(1,0,0)$ à 1 GHz.

FIG.5 - Atténuation d'ultrasons de polarisations longitudinale et transversale se propageant suivant l'axe (1,1,0) pour des fréquences comprises entre 500 et 980 MHz. Le maximum se déplace également vers les basses températures quand la fréquence croît, son amplitude est nettement inférieure à celle observée suivant l'axe (0,0,1), puisque $\Delta\alpha_M$ (0,0,1) $\sim$ 2,5 $\Delta\alpha_M$(1,1,0) à 1 GHz.

FIG.6 - Variation de la vitesse de phase sur une large gamme de températures permettant la détermination de l'asymptote pour $T > T_N$ pour onde de polarisation longitudinale de vecteur d'onde $\vec{q}$ tel

FIG.7 - Variation de la vitesse de phase pour des températures situées de part et d'autre de T_N d'une onde de polarisation longitudinale se propageant suivant l'axe (0,0,1). Au-dessous de T_N le minimum de $\Delta V/V_o$ decroît de 100 à 500 MHz. Il n'existe plus à 720 MHz.

FIG 8 - Courbe de variation de $\Delta V/V_o$ en fonction de T pour une onde de polarisation longitudinale se propageant parallèlement à l'axe (0,0,1) du cristal N° 1. Les courbes 90 et 110 MHz représentent les résultats de MORAN et LÜTHI[3]. On voit que la courbe obtenue ici à 100 MHz est située juste en-dessous de celle à 110 MHz de la publication[3].

FIG.9 - La courbe représente la variation de vitesse de phase très près de T_N pour une onde longitudinale de fréquence 100 MHz se propageant suivant l'axe (0,0,1) du cristal N° 1. Le maximum de vitesse détermine T_N.

FIG.10 - Variation d'atténuation dans le cristal N°1 pour une onde de polarisation longitudinale de fréquence 500 MHz se propageant suivant l'axe (0,0,1) du cristal N°1 sans champ magnétique et avec un champ magnétique de 30 KG. On voit sur cette courbe que l'influence du champ magnétique est négligeable sauf au-dessous de 60°K où son action provoque une légère diminution de l'atténuation.

FIG. 11 - Variation de vitesse de phase d'une onde longitudinale se propageant suivant l'axe (0,0,1) du cristal N°1 avec un champ magnétique de 30 KG et sans champ magnétique. L'influence du champ magnétique se traduit par une petite diminution de $\Delta V/V_o$ pour $T > T_N$ et par une légère augmentation pour $T < T_N$. La variation intervient sur 20°K de part et d'autre de T_N, ensuite la courbe rejoint celle que l'on obtient sans champ magnétique.

FIG.12 - Variation pour $T > T_N$ de $\log\alpha$ en fonction de $\log\varepsilon$ pour une onde de polarisation longitudinale se propageant suivant l'axe (0,0,1) du cristal N°1. La pente de la droite est égale à $\sim$ 0,08 pour $\varepsilon < 3 10^{-2}$.

FIG.13 - Variation pour $T > T_N$ de $\log\alpha$ en fonction de $\log\varepsilon$ pour une onde de polarisation longitudinale se propageant suivant l'axe (1,0,0) du cristal N° 4. La pente de la droite est égale à $\sim$ 0,02 pour $\varepsilon < 2 10^{-2}$.

FIG.14 - Variation pour $T > T_N$ de $\log\alpha$ en fonction de $\log\varepsilon$ pour une onde de polarisation longitudinale se propageant suivant l'axe (1,1,0) du cristal N°5. La pente de la droite est égale à $\sim$ 0,01 pour $\varepsilon < 2\ 10^{-}$.

LEGENDE DU TABLEAU N°1 :

Ce tableau donne un numéro à chaque cristal en fonction de son origine, l'axe de propagation des ultrasons, la polarisation des ondes et la fréquence des expériences sont données. Il précise de quelle manière les ultrasons ont été propagés dans le cristal .

1 - Excitation d'ondes ultrasonores dans une courbe de ZnO déposée sur un corindon collé sur le cristal.

2 - Génération des ultrasons dans une couche de ZnO directement déposée sur MnF_2

LEGENDE DU TABLEAU N°2 :

Ce tableau donne en fonction de la fréquence le déplacement en température ($\Delta T = T_N - T_M$) et l'amplitude du maximum d'atténuation.

TABLEAU 1

N° de Référence	Origine du cristal	Longueur en mm	Génération d'ultrasons	$\vec{q}$ Axe	Expériences aux fréquences GHz			
					$\Delta\alpha$		$\Delta V/V_o$	
					Pol.Long.	Pol.Trans	Pol.Long.	Pol. trans.
1	C.E.A	3	1	(0,0,1)	0,1, 0,2, 0,5, 0,72 1		0,1,0,2,0,5 0,72	
2	Wilkinson	6	2	(0,0,1)	0,2, 0,5, 0,72	0,2, 0,5, 0,72		0,2, 0,5
3	C.E.A	6,8	2	(0,0,1)	0,5-1	0,5-1		
4	Nuclear Metals	4	2	(1,0,0)	0,5, 0,72, 1	0,5, 0,72,0,98		
5	C.E.A	7.10	2	(1,1,0)	0,5, 0,72, 0,980	0,5, 0,72,0,98		
6	Wilkinson	6	2	(1,1,0)	0,25,0,5, 0,955	0,25,0,50,0,955		

TABLEAU N°2

Fréquence en MHz	$\Delta T = T_M - T_N$ en °K	Amplitude du maximum en dB/cm
200	2,4	28,2
300	4,3	
400	5,5	
500	7,3	47,1
600	8,3	
720	9,1	48,5
800	10,8	
1000	12,4	

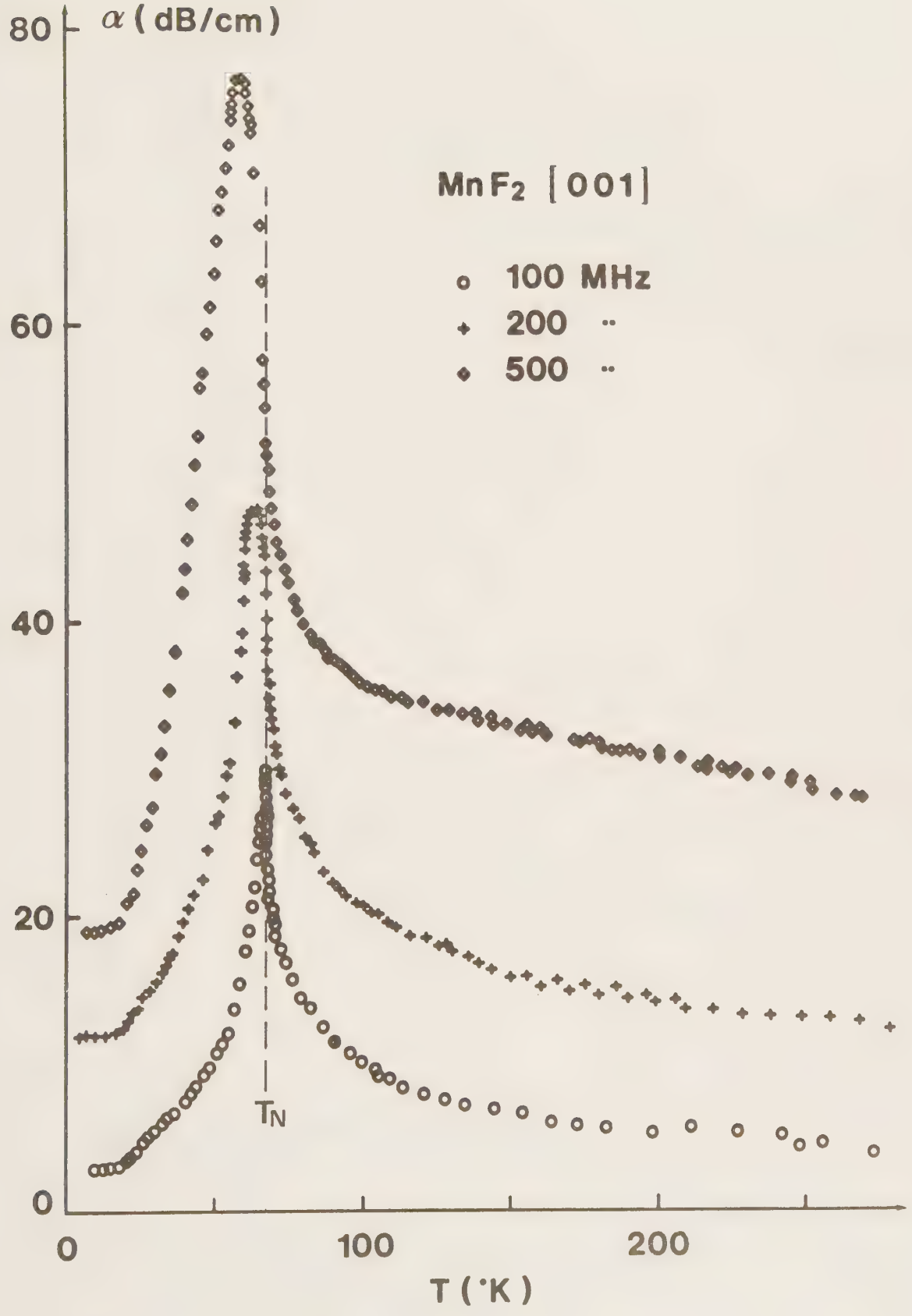


FIG.1

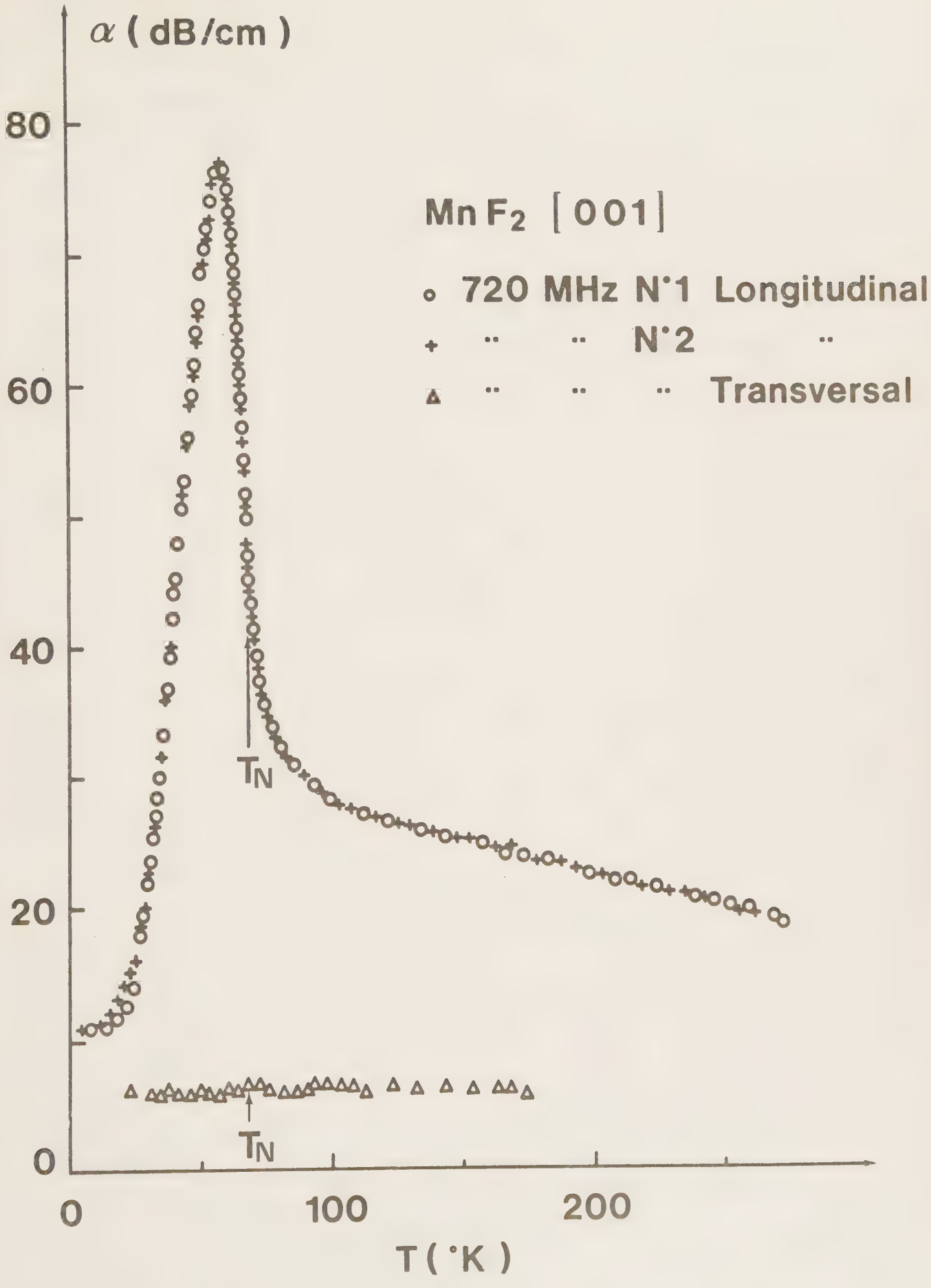

α (dB/cm)
80
60
40
20
0
Mn F2 [001]
720 MHz N°1 Longitudinal
N°2
Transversal
TN
TN
0
100
200
T (°K)

FIG.2

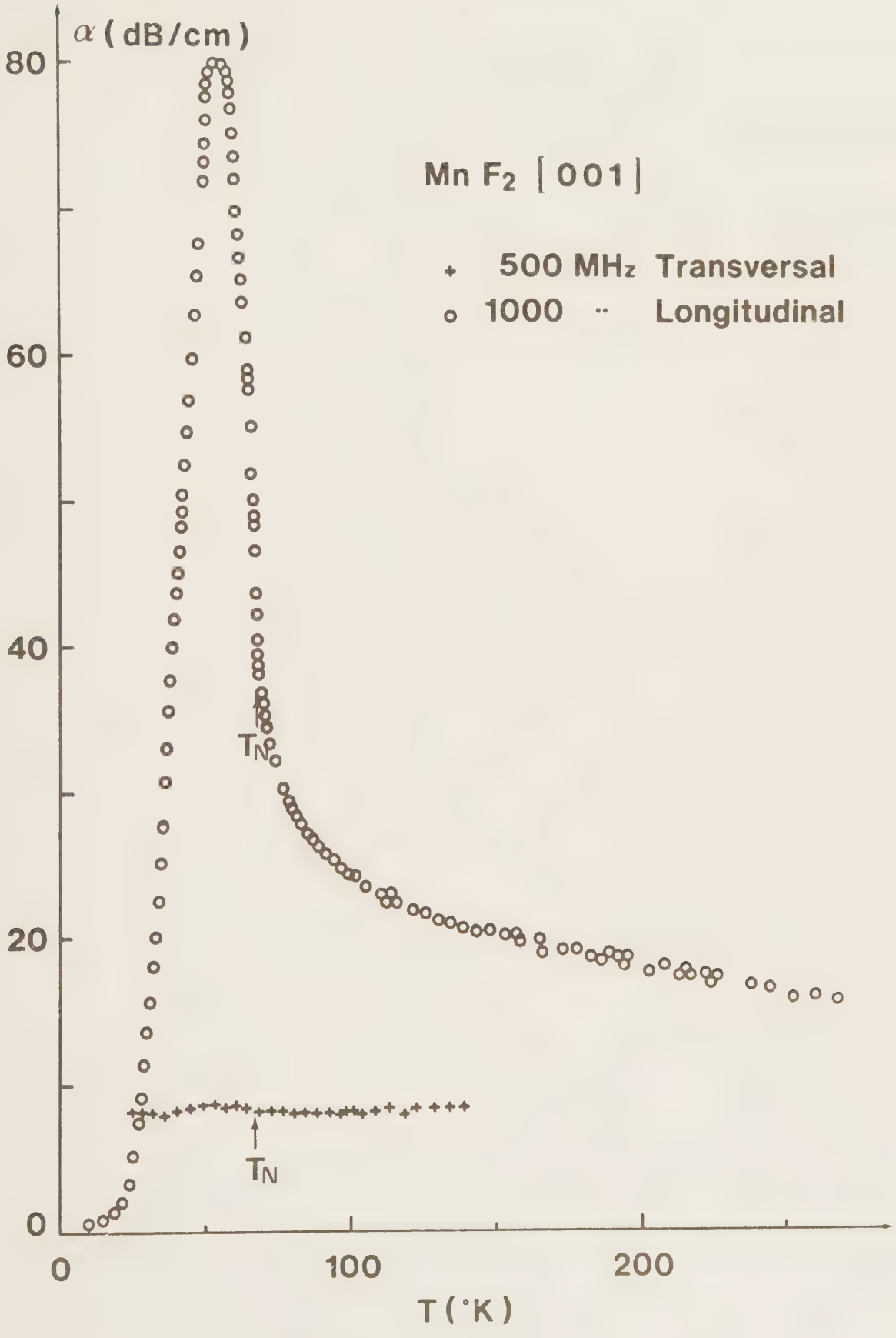

α (dB/cm)
80
60
40
20
0
Mn F2 [001]
500 MHz Transversal
1000 " Longitudinal
TN
TN
0
100
200
T(°K)

FIG.3

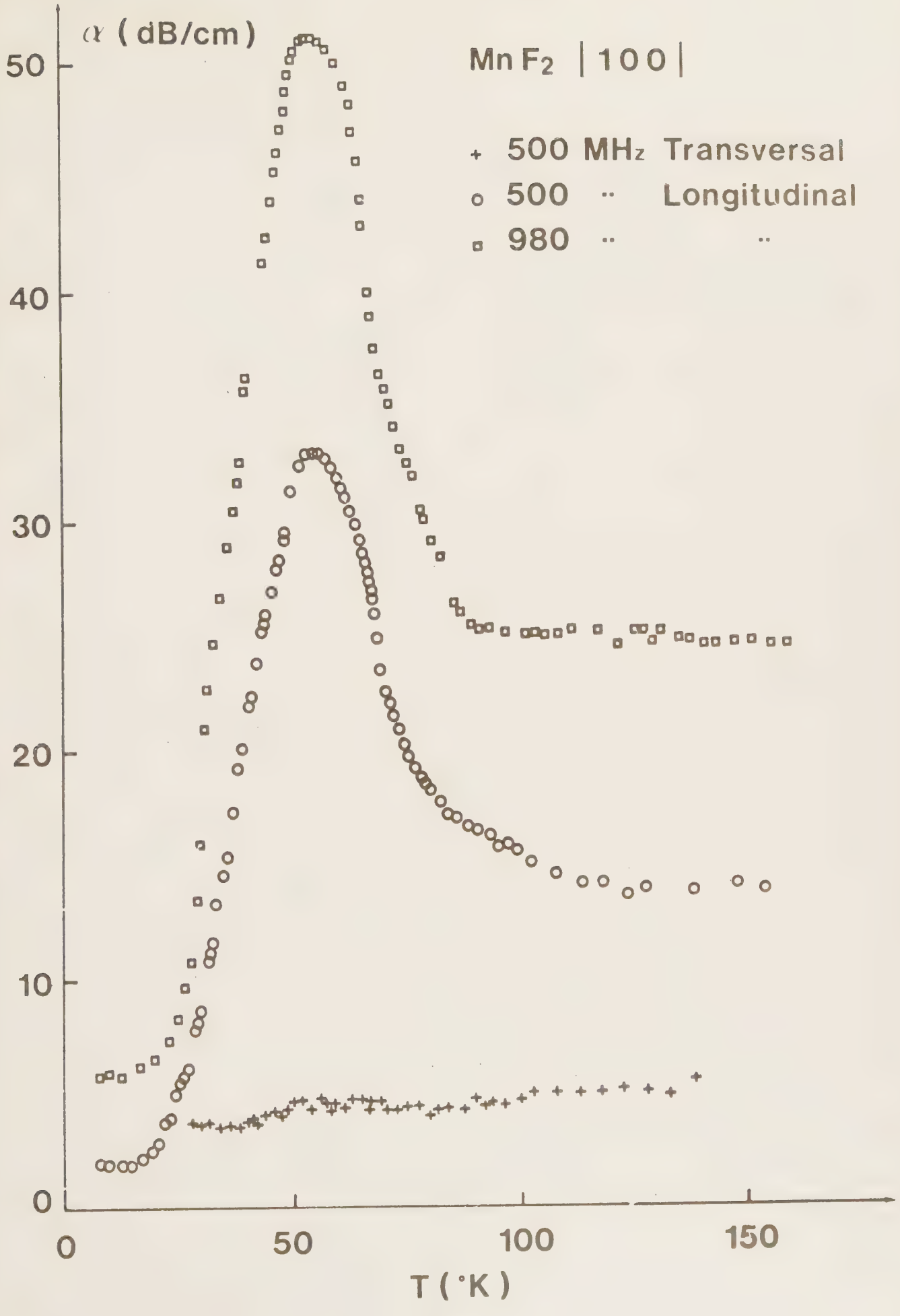

α (dB/cm)
Mn F2 | 100 |
+ 500 MHz Transversal
o 500 " Longitudinal
□ 980 " "
50
40
30
20
10
0
0
50
100
150
T (°K)

FIG.4

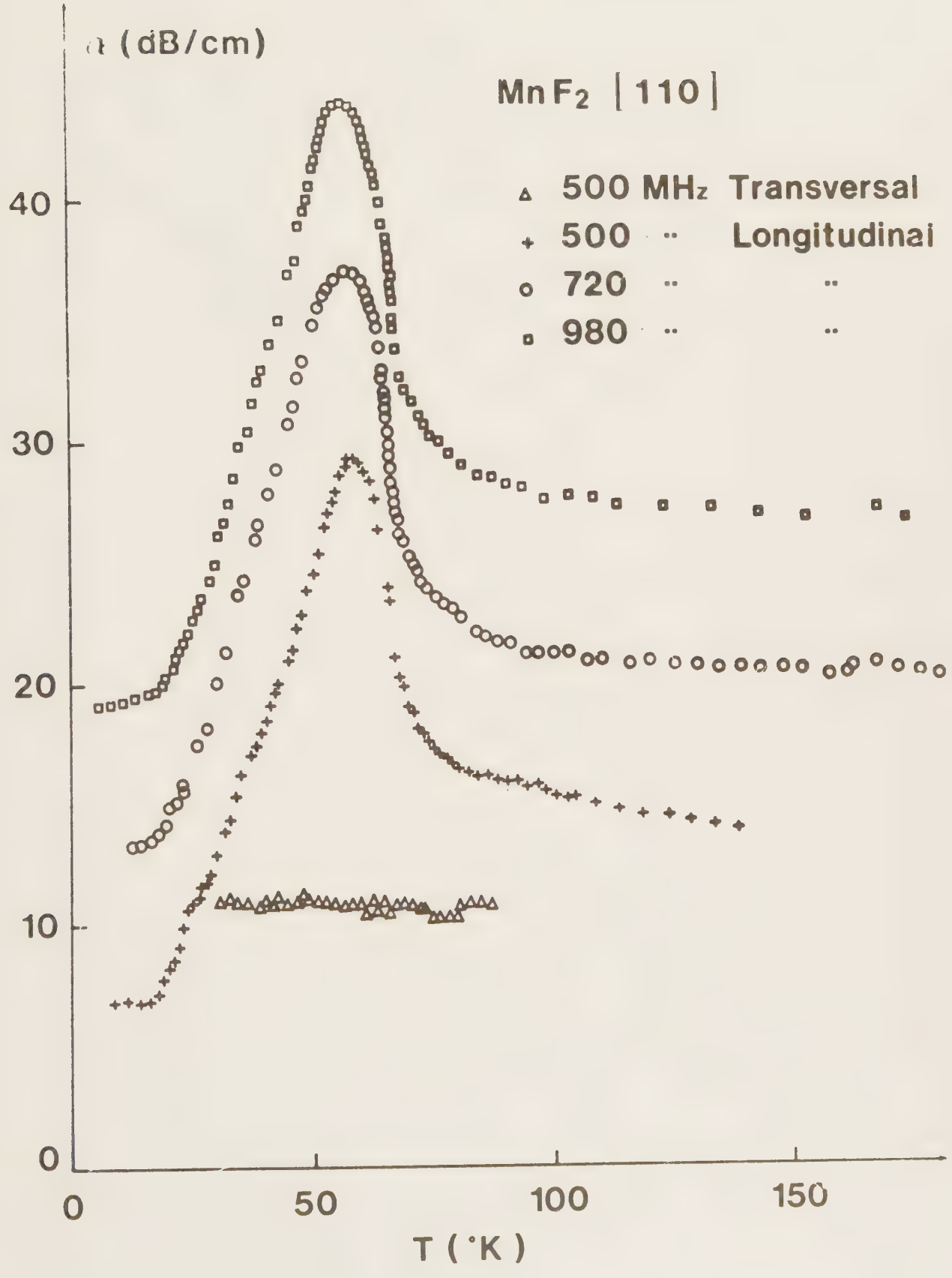

α (dB/cm)
MnF2 [110]
500 MHz Transversal
500 " Longitudinal
720 " "
980 " "
40
30
20
10
0
0
50
100
150
T (°K)

FIG.5

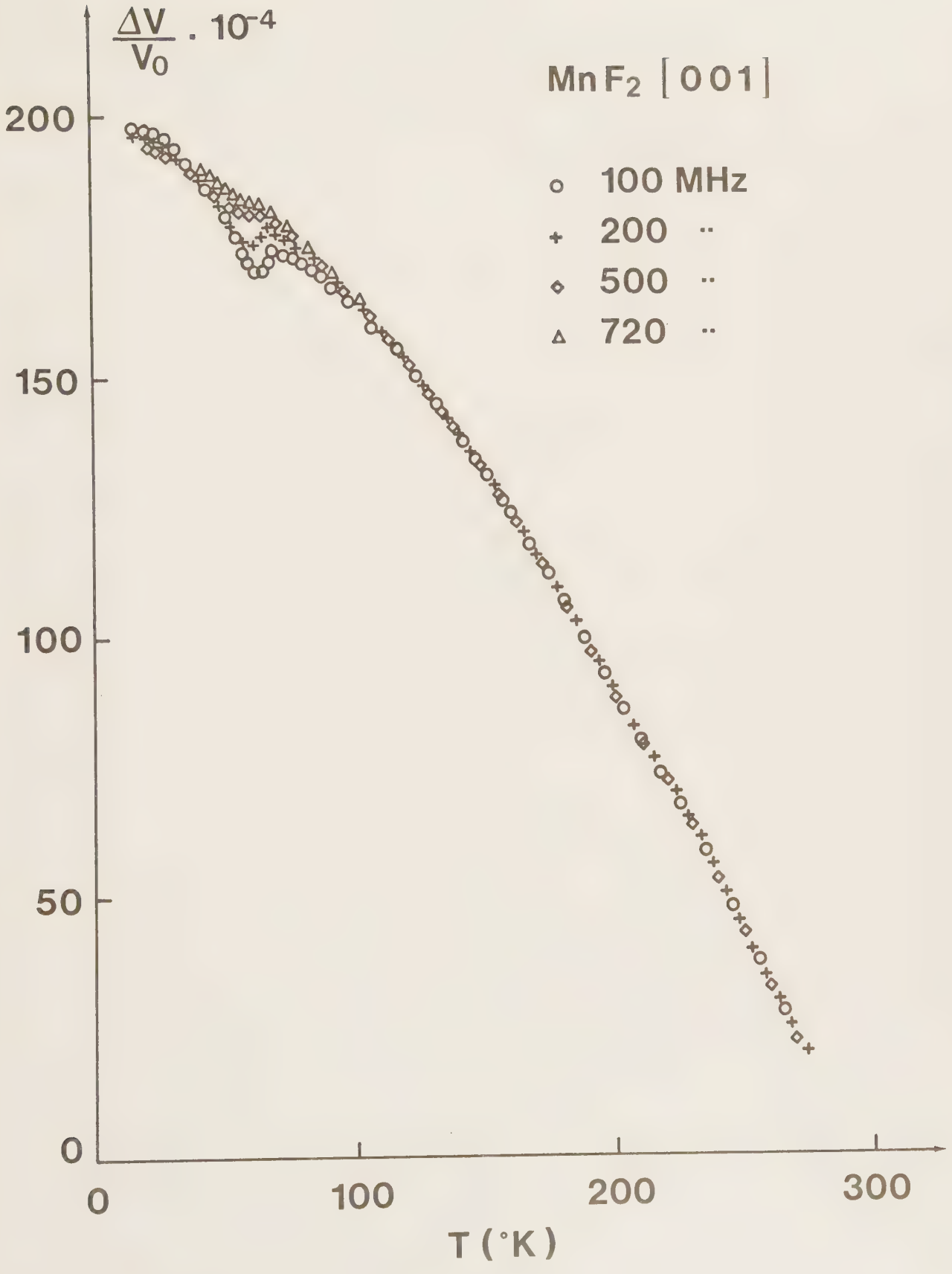

ΔV/V0 . 10-4
MnF2 [001]
100 MHz
200 ··
500 ··
720 ··
200
150
100
50
0
0
100
200
300
T (°K)

FIG.6

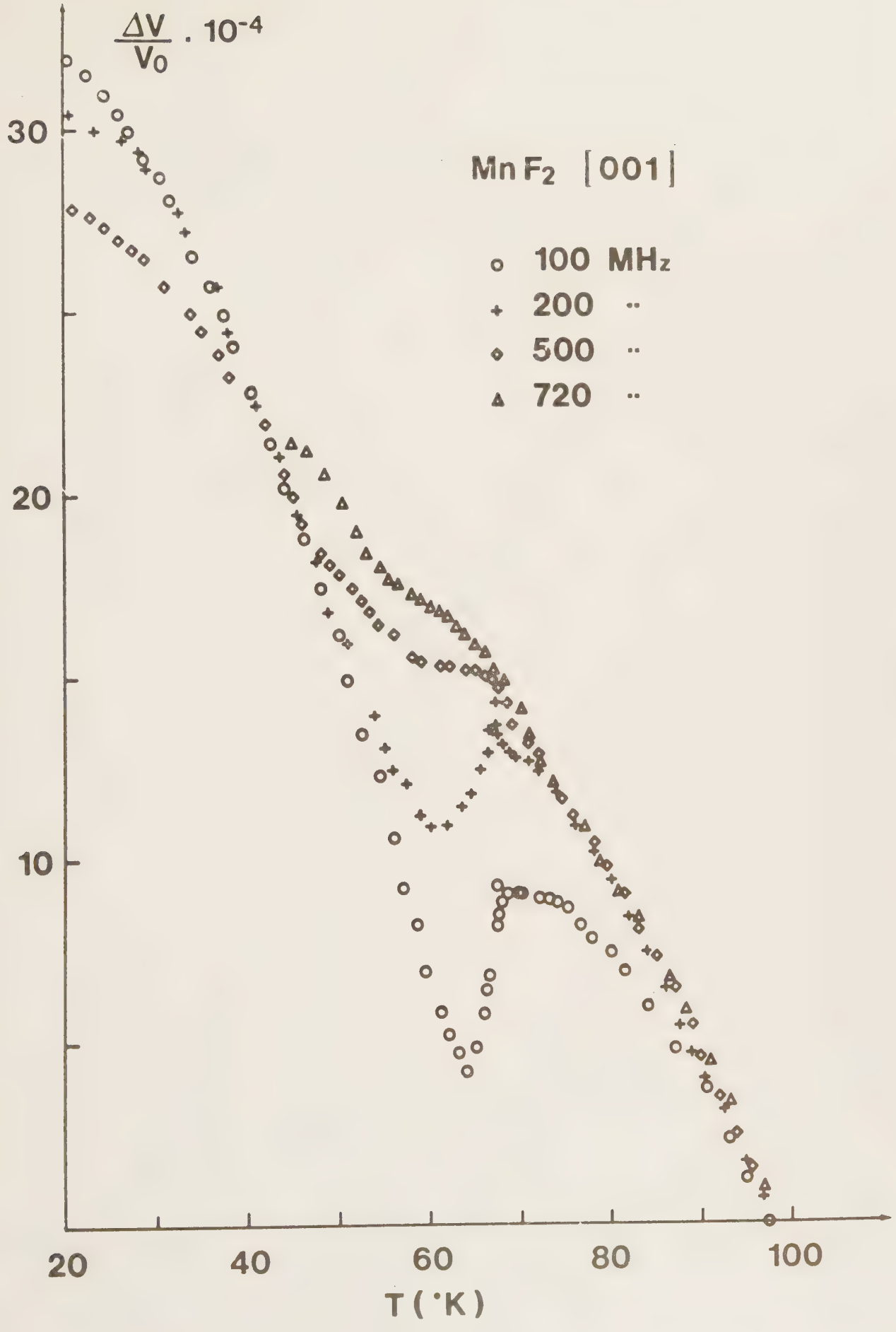


FIG.7

FIG.8

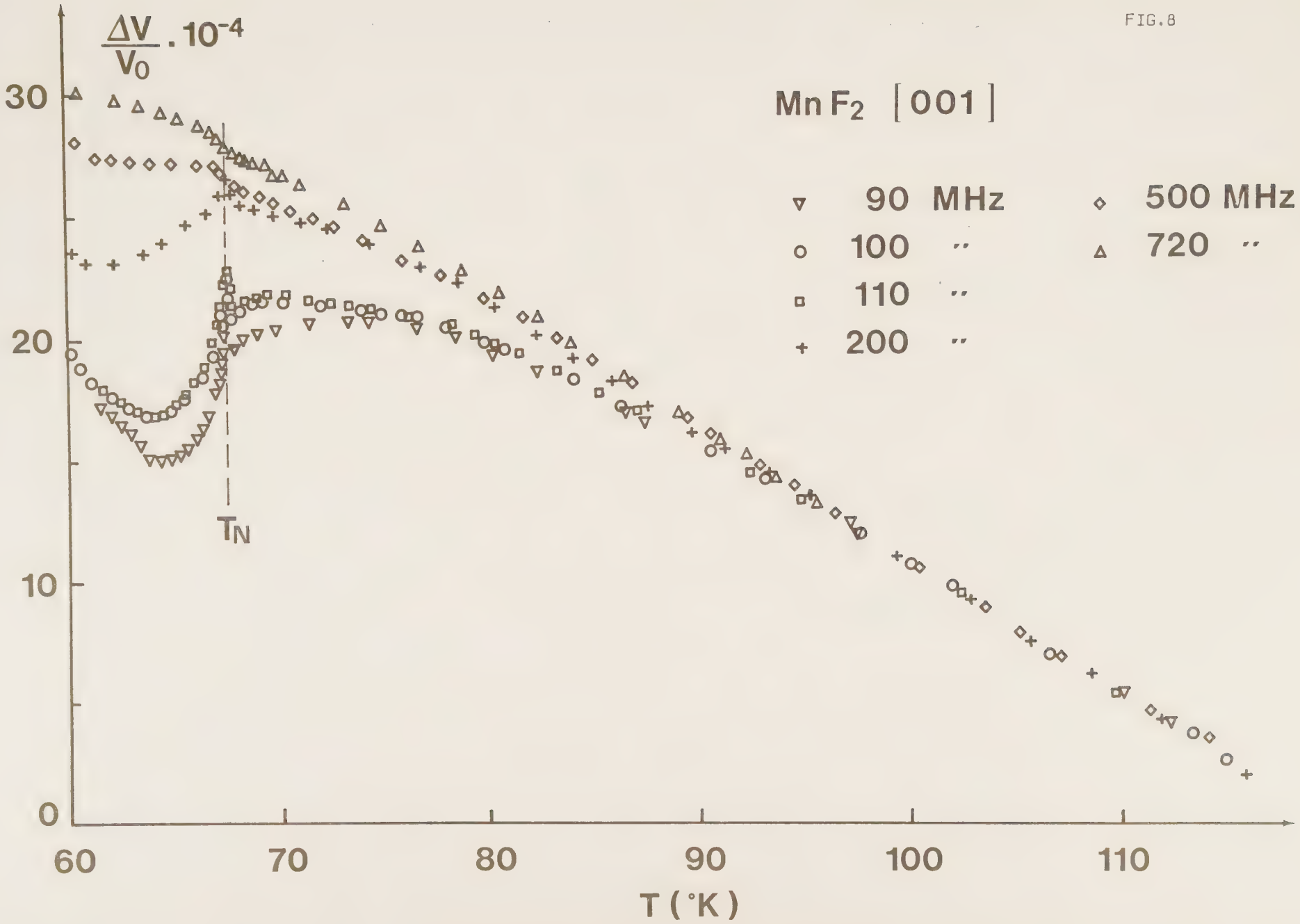
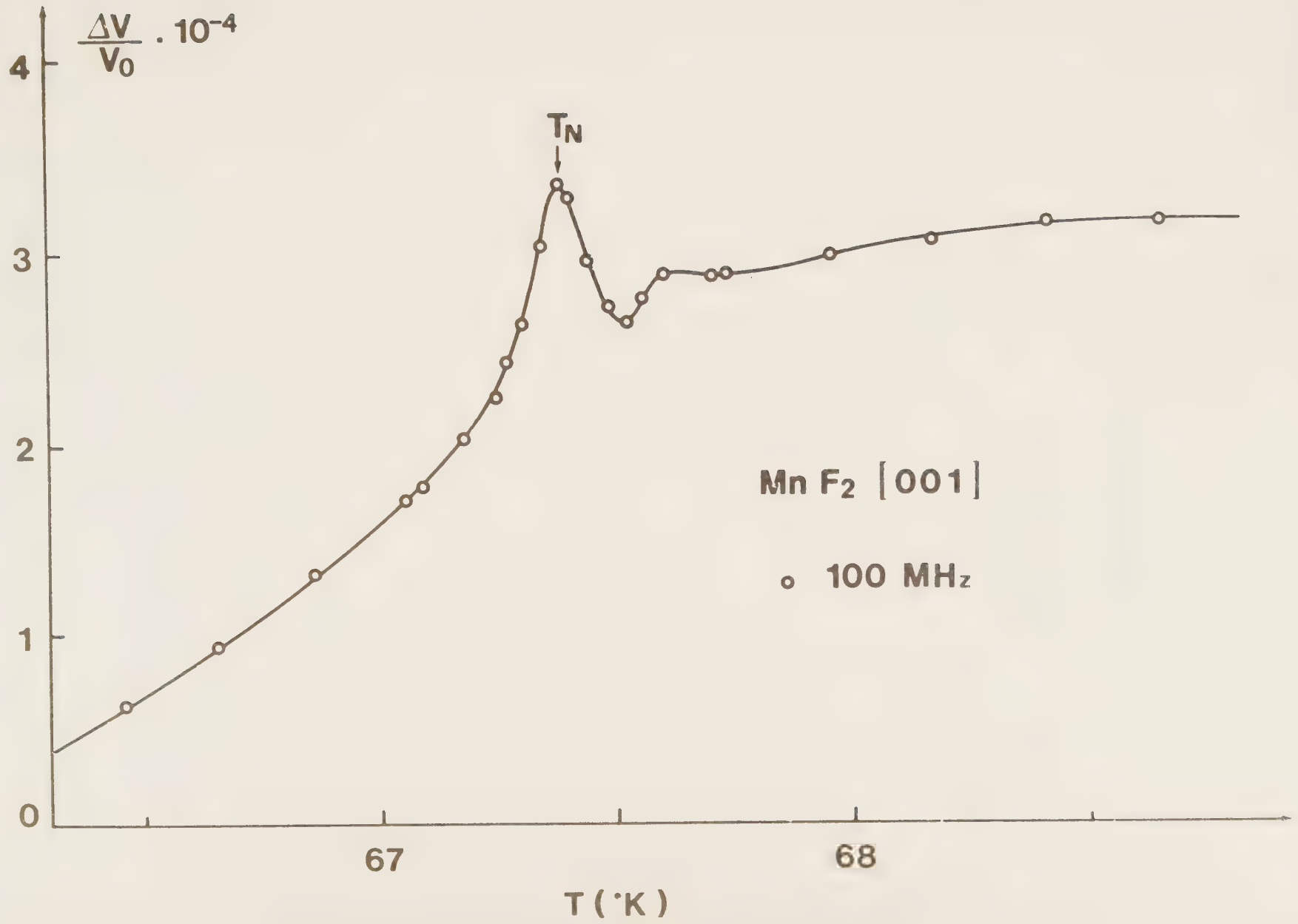

ΔV/V0 . 10-4
30
20
10
0
Mn F2 [001]
90 MHz
100 ''
110 ''
200 ''
500 MHz
720 ''
TN
60
70
80
90
100
110
T (°K)

FIG.9



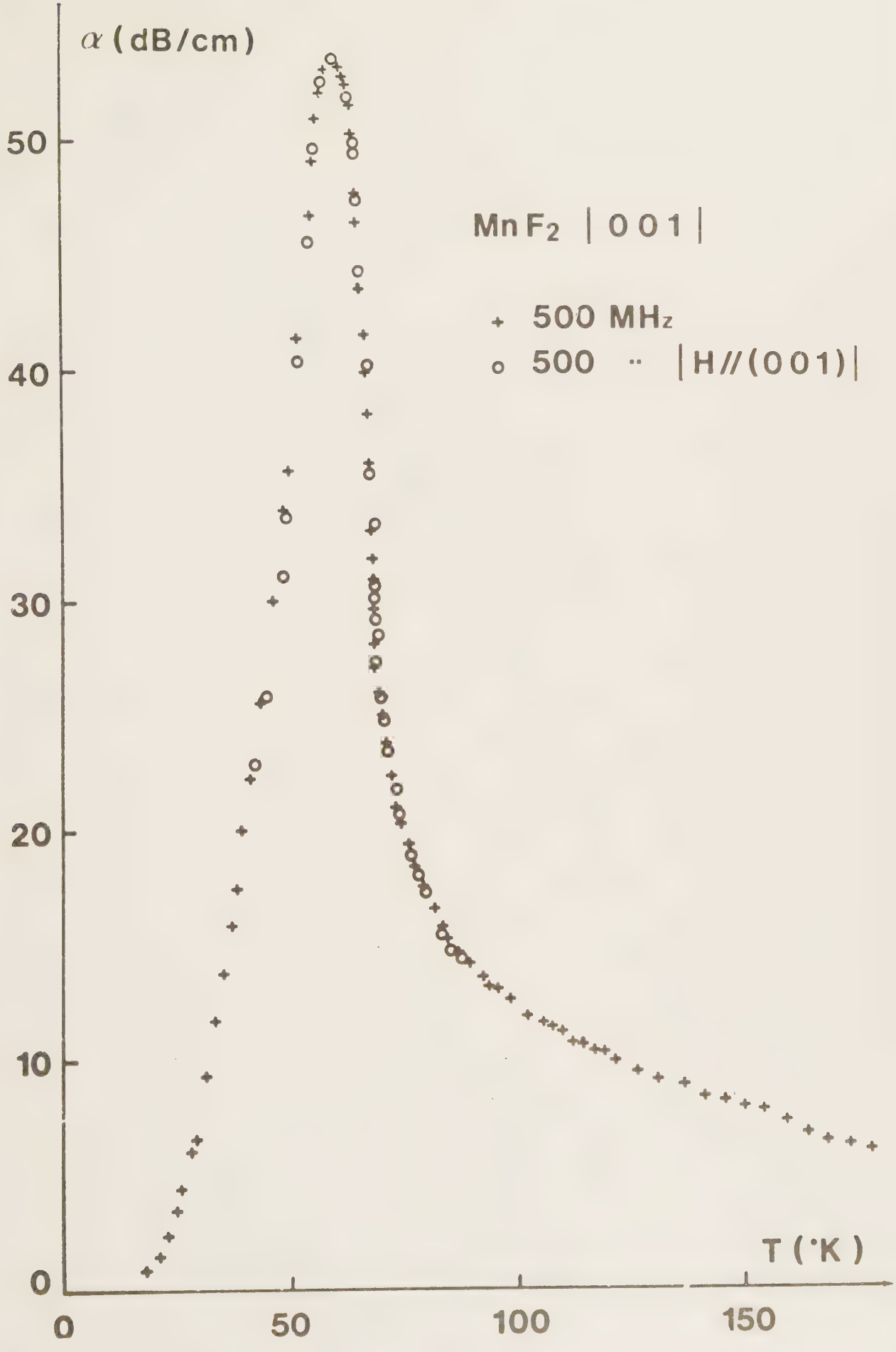


FIG.10

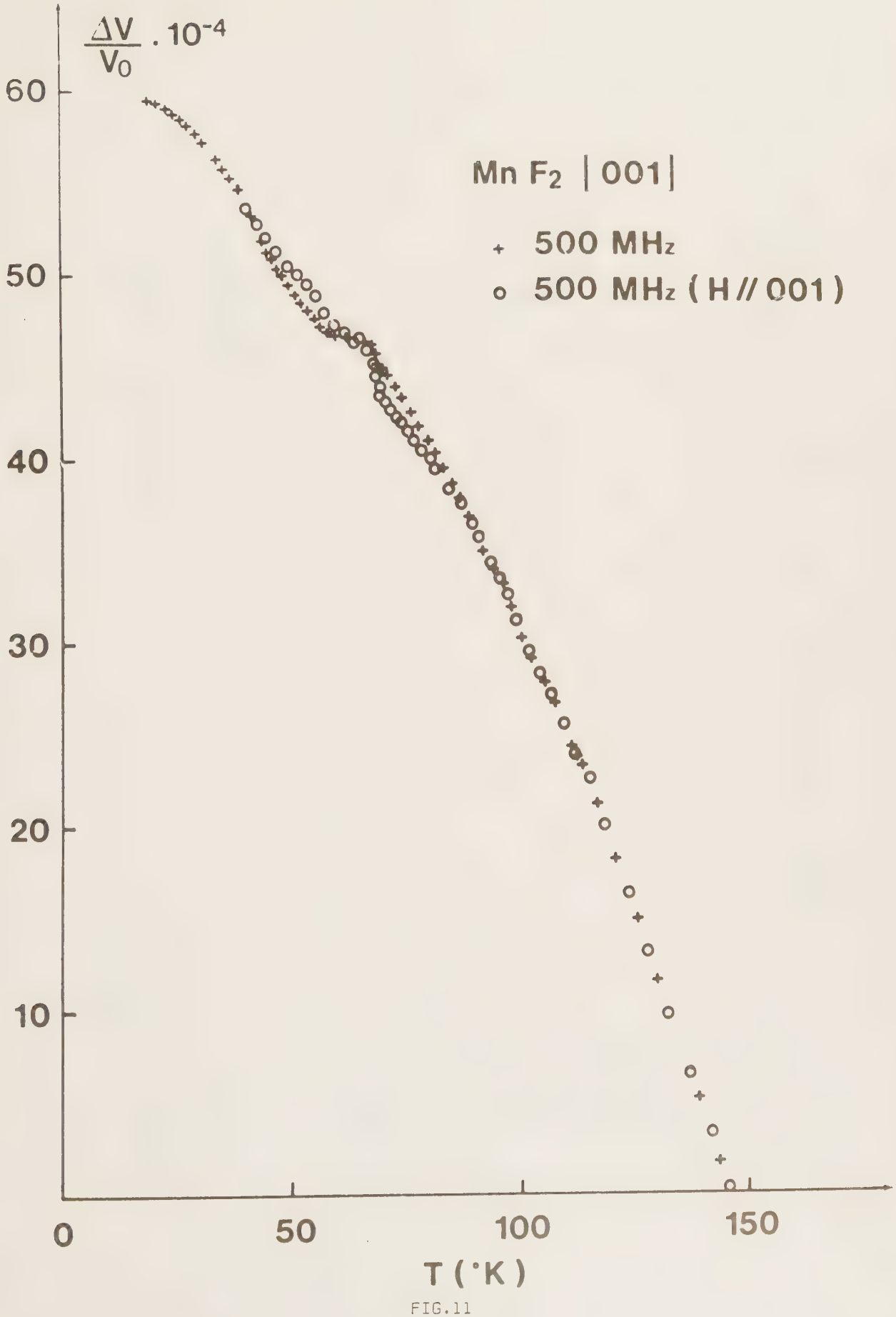

ΔV/V0 . 10-4
60
50
40
30
20
10
0
50
100
150
T (°K)
Mn F2 | 001 |
+ 500 MHz
o 500 MHz (H // 001)

FIG.11

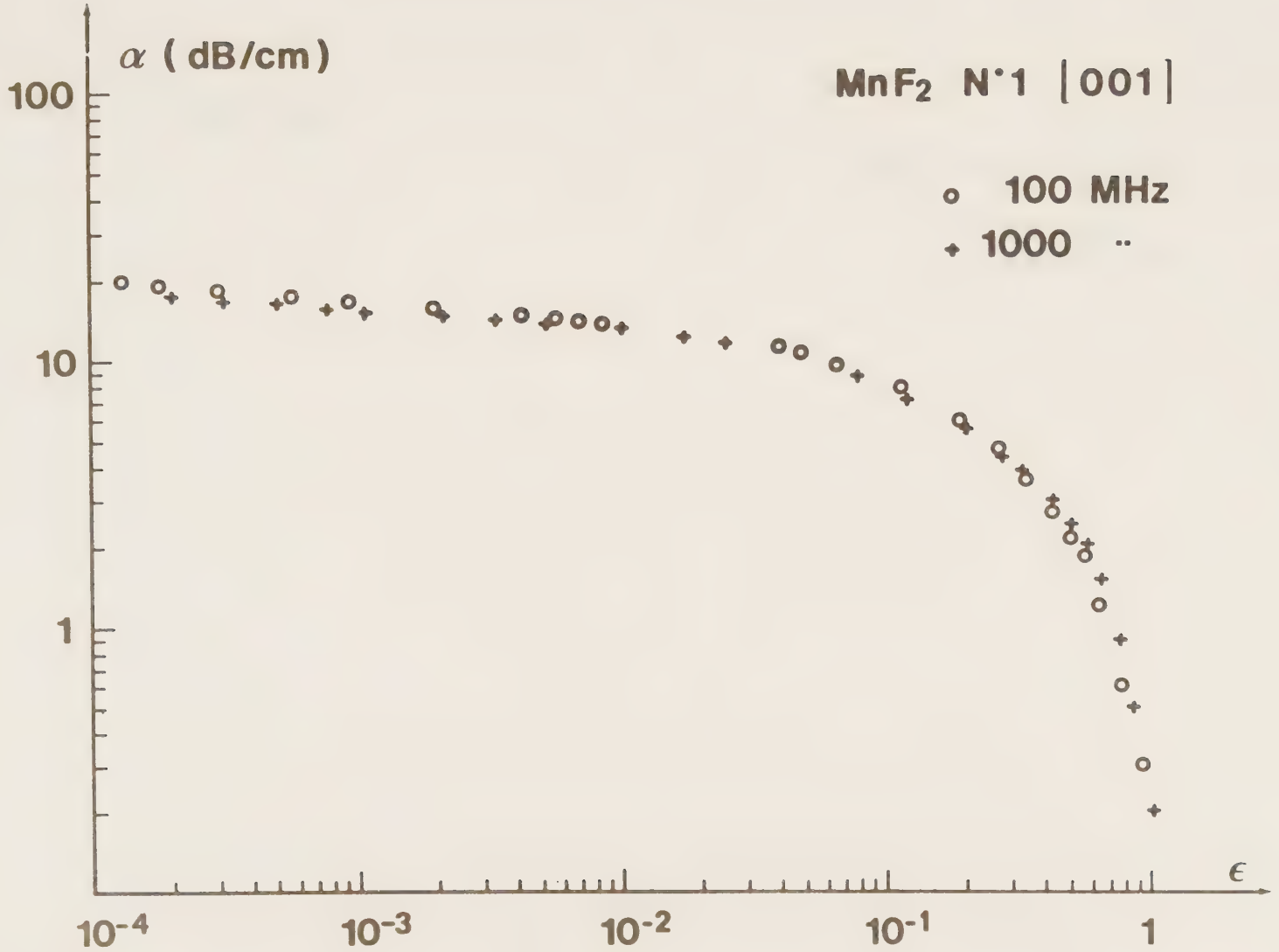


FIG.12

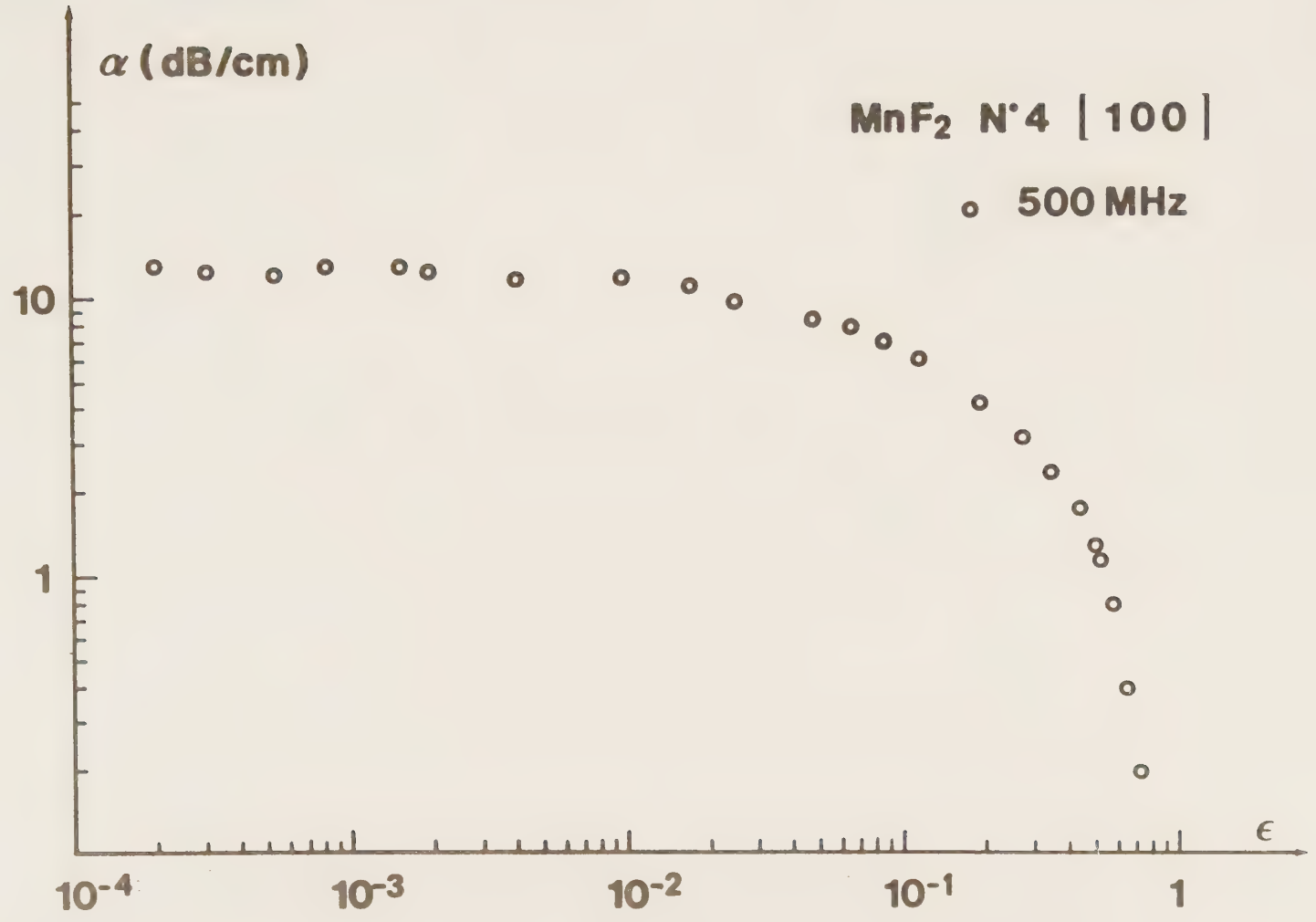


FIG.13

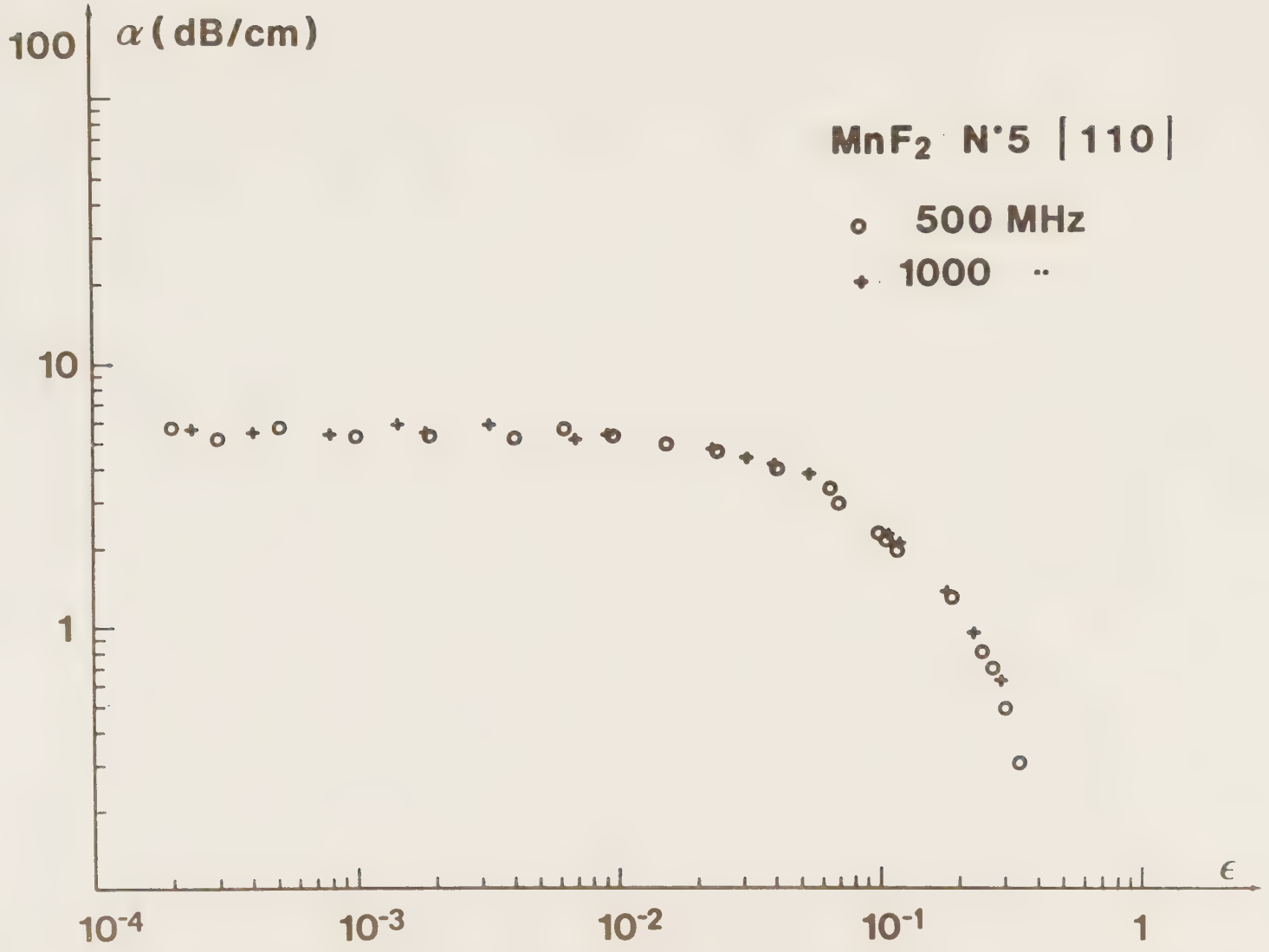


FIG.14

5

CONCLUSION

Les expériences sur les transitions de phase sont délicates. Il faut maîtriser complètement le paramètre température et, il est bien connu que,du point de vue expérimental,c'est l'un des moins commodes. L'étroitesse de la transition de Cr_2O_3, la nécessité de travailler très près de la température critique de MnF_2 pour vérifier s'il n'y avait pas de divergence de l'atténuation ou de la vitesse de phase, la nécessité, enfin, de réguler pendant des temps suffisants pour atteindre une bonne homogénéité en température, ont conduit à la conception de la régulation de température décrite ci-dessus. Les absorptions ultrasonores considérables ont nécessité l'emploi de transducteurs de ZnO. Il a fallu d'autrepart mettre au point le dispositif hyperfréquence permettant d'exciter les ultrasons dans la couche. Ce système doit faire preuve d'un fonctionnement sans défaillance dans une vaste gamme de température et durant un temps indéterminé. Pour MnF_2, il a été nécessaire de faire des collages sans oscillations du signal ultrasonore, donc avec des liquides à bas point de solidification.

Dans la zone des températures concernées par les transitions de Cr_2O_3 et MnF_2, des étalonnages conformes à l'échelle internationale pratique de 1968 ont été utilisés.

Dans le cas de Cr_2O_3, afin d'obtenir la précision maximum sur la mesure des coefficients critiques et de compenser un éventuel manque de fidélité de la résistance de mesure, un étalonnage localisé dans la zone des températures proches de la transition a été fait.

Dans MnF_2 comme dans Cr_2O_3, ces expériences ont montré que le couplage dominant était celui de la magnétostriction en volume et que la magnétostriction sur un ion était complètement négligeable. Ceci a été établi pour les deux corps

dans une large gamme de température : (de 20°K à 400°K pour MnF_2).

En ce qui concerne Cr_2O_3, les fréquences ultrasonores utilisées dans ce travail se situent dans les régimes basse fréquence ($\omega\tau << 1$) et fréquence intermédiaire ($\omega\tau \sim 1$).

L'étroitesse de la transition vue aux ultrasons est compatible avec la portée des interactions d'échange mesurée aux neutrons. Comme ces interactions interviennent jusqu'au douzième voisin, ce ne sont pas des interactions à courte portée (premier et deuxième voisin). Elles ont une portée comprise entre celles qui interviennent dans les corps magnétiques conducteurs et celles qui sont dominantes à la transition des magnétiques isolants du type MnF_2. En ce sens Cr_2O_3 est intermédiaire entre les cristaux magnétiques conducteurs et les cristaux isolants.

La mesure de la variation de vitesse de phase des ondes ultrasonores dans Cr_2O_3 a permis de déterminer le coefficient critique α de la capacité calorifique de spin : $\alpha = 0{,}14 \pm 0{,}01$ suivant l'axe ternaire, $\alpha = 0{,}12 \pm 0{,}01$ suivant l'axe binaire.

Cette mesure est effectuée àvec une précision supérieure à celle de la méthode calorimétrique. Avec la méthode expérimentale utilisée, la précision sur la mesure de $\frac{\Delta V}{V_o}$ atteint 10^{-5} à 1 GHz. Un autre avantage de la méthode ultrasonore est d'être d'un emploi plus aisé aux températures considérées (308°K). Il serait néanmoins très intéressant de faire la mesure directe de la capacité calorifique, ne serait-ce que pour vérifier si l'on obtient bien le résultat théoriquement prévu.

La valeur de γ déduite de y et de α est ici une valeur indicative. Elle devrait pouvoir être vérifiée et précisée par une étude de diffusion des neutrons.

Pour $T < T_N$ le comportement du paramètre d'ordre en fonction de la température réduite et des modes critiques de la transition n'est pas connu, l'étude de ce dernier n'ayant pas été faite aux neutrons. On peut néanmoins déduire de la variation du maximum d'atténuation que le comportement de χ se met à croître pour les températures décroissantes

inférieures à T_N, contrairement à ce qui se passe dans MnF_2 [1]

Le cas de MnF_2 est profondément différent de celui de Cr_2O_3. Pour $T > T_N$, on est ici, dès 0,1GHz, dans le régime intermédiaire, en ce qui concerne l'atténuation, on obtient le régime haute fréquence pour une gamme de température réduite qui correspond à celle de la mise en évidence du couplage dans le cas basse fréquence avec les fluctuations d'énergie, expérience qui a été faite pour des fréquences ultrasonores variant de 10 à 30 MHz [2].

Aux fréquences considérées, la variation de $\frac{\Delta V}{V_o}$ n'est plus critique. Pour $T > T_N$, il n'est pas possible de déterminer son coefficient critique α. Cette détermination a été faite grâce à des expériences ultrasonores de basse fréquence [2] (10 à 30 MHz). Elle a également été faite par la méthode directe [3]. Ceci permet de comparer les résultats obtenus. Pour $T > T_N$, la méthode directe ne peut choisir entre une singularité logarithmique et une singularité de la forme $\varepsilon^{-\alpha}$. En admettant cette dernière hypothèse on obtient $\alpha = 0,1$ et $\alpha = 0,13$ avec la méthode ultrasonore. De plus, les deux méthodes donnent une variation linéaire dans un graphe Log C - Log ε ou Log $\frac{\Delta V}{V_o}$ - Logε jusqu'à $\varepsilon = 10^{-1}$. Ceci montre que les prévisions du calcul théorique sont dans ce cas très bien vérifiées par l'expérience. On peut en déduire, bien que la nature des modes de fluctuations soit différente, qu'il en est de même dans Cr_2O_3 car le temps de relaxation n'intervient pas dans $\frac{\Delta V}{V_o}$.

Pour $T < T_N$, les processus tels que l'interaction des ondes ultrasonores avec les ondes de spin, les spins nucléaires, les modes localisés et les impuretés ne peuvent pas être responsables du maximum observé sur l'atténuation.

L'effet Landau-Khalatnikov de la relaxation adiabatique du paramètre d'ordre explique par contre la variation de l'amplitude du maximum et son déplacement avec la température en n'utilisant que les propriétés physiques de MnF_2 et sans introduire aucun paramètre extérieur.

Il reste à déterminer la plage de température sur laquelle le découplage utilisé dans la fonction de corrélation à quatre opérateurs de spin en produit de fonction de corrélation à deux opérateurs est valable. D'après une évaluation théorique [4] ceci est vrai pour $\varepsilon > 0{,}01$ et pour $T > T_N$. Si l'on admet que c'est toujours vrai pour $T < T_N$, les résultats expérimentaux satisfont à cette condition.

Ces expériences ont montré que les études aux neutrons et aux ultrasons sont complémentaires, les expériences ultrasonores permettant d'atteindre une bien meilleure précision lorsque de faibles vecteurs d'onde entrent en jeu. Par contre, elles ne sont pas encore capables de procéder à des études aux grands vecteurs d'onde.

Une intéressante question reste pendante dans cette thèse. Elle concerne la vérification de la théorie de K. Kawasaki pour l'atténuation des ultrasons de haute fréquence dans les corps magnétiques.

Dans MnF_2 la courte portée des interactions et la symétrie de la structure induisent un couplage partiel avec les fluctuations de la densité d'énergie ; le mode de fluctuation du paramètre d'ordre ne devient prépondérant qu'entre T_N et $T_N \pm 0{,}02°K$.

Dans Cr_2O_3, du fait de la portée des interactions d'échange, les ultrasons sont couplés aux fluctuations du paramètre d'ordre, l'étroitesse de la transition rend cette vérification très problématique. Il faudrait dans ce cas pouvoir explorer aisément des valeurs de ε proches de 10^{-7}. Ceci semble actuellement techniquement impossible.

Ces considérations esquissent les caractéristiques du corps idéal pour vérifier cette théorie. Il ne doit pas posséder une trop grande symétrie, ou alors, il doit avoir des interactions de portée suffisante. Son point de Néel doit être proche mais inférieur à celui de la transition suprafluide de $l'He_4$ où l'on sait mesurer aisément des ε de 10^{-7}. A ces températures l'homogénéité en température ne pose plus de

problème. Un avantage supplémentaire de ce choix serait la gamme des fréquences disponible. Dans ce cas, l'atténuation due aux phonons est faible, la gamme des fréquences ultrasonores peut varier de quelques MHz à 10 GHz.

Enfin, la mesure du coefficient de dilatation de Cr_2O_3 à la transition présenterait un intérêt certain. En plus du comportement en fonction de la température de la fonction de corrélation correspondante, il permettrait de vérifier éventuellement que les fluctuations de la densité d'énergie sont négligeables.

Dans ce cas , la variation du coefficient de dilatation ne serait pas proportionnelle à celle de la capacité calorifique de spin mesurée aux ultrasons ou par la méthode directe.

BIBLIOGRAPHIE

(1) M.P. SCHULHOF , R. NATHANS, P. HELLER, A. LINZ, Phys.Rev. B4, 2254 (1971)

(2) K. KAWASAKI, A. IKUSHIMA Phys.Rev.B1, 3143 (1970).

B. LÜTHI, T.J. MORAN, R.J. POLLINA. J.Phys.Chem.Solids, 31, 1741 (1970).

(3) D.T. TRANEY, Phys.Rev.Lett. 14, 898 (1965).

(4) H.S. BENNETT, E. PYTTE, Phys.Rev. 155, 553 (1967).

ACADÉMIE DE PARIS

UNIVERSITÉ DE PARIS VI

4, Place Jussieu - 75230 PARIS-CEDEX 05

SERVICE DE LA SCOLARITE

Bureau des Enseignements du 3e cycle

TÉLÉPHONE : 336-25-25 - 325-12-21

PERMIS D'IMPRIMER

DUPLICATA

DOCTORAT : D'ETAT

THESE DE : PHYSIQUE

NOM : Monsieur BACHELERIE

Prénoms : André

né le 11 Octobre 19 32 à Paris Dépt : Seine

1ère THESE : " Etude des transitions de phase de Cr_2O_3 et de MnF_2 avec des ultrasons de haute fréquence (0,1 1,5 GHz).

2e THESE (Propositions faites par l'Université) :

PRESIDENT. M. TAVERNIER

EXAMINATEURS. MM. HARTMANN
BOUTRON
JOFFIN
VILLAIN

Vu et Approuvé

PARIS, le 8 Avril 1974

Le Président

de l'Université de PARIS VI

ACADEMIE DE PARIS
UNIVERSITÉ PARIS VI